

日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE

J1050 U.S. PTO
10/026064
12/21/01

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出 願 年 月 日

Date of Application:

2001年 1月29日

出 願 番 号

Application Number:

特願2001-020817

出 願 人

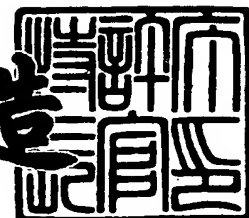
Applicant(s):

株式会社半導体エネルギー研究所

2001年10月19日

特 許 庁 長 官
Commissioner,
Japan Patent Office

及 川 耕 造



出証番号 出証特2001-3091663

【書類名】 特許願

【整理番号】 P005474

【特記事項】 特許法第30条第1項の規定の適用を受けようとする特許出願

【提出日】 平成13年 1月29日

【あて先】 特許庁長官 及川 耕造 殿

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県厚木市長谷398番地 株式会社半導体エネルギー研究所内

【氏名】 瀬尾 哲史

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県厚木市長谷398番地 株式会社半導体エネルギー研究所内

【氏名】 山崎 舜平

【特許出願人】

【識別番号】 000153878

【氏名又は名称】 株式会社半導体エネルギー研究所

【代表者】 山崎 舜平

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 002543

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【ブルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 発光装置

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

陽極と、陰極と、前記陽極および前記陰極の間に設けられた有機化合物膜と、からなる有機発光素子を含む発光装置において、前記有機化合物膜は、電子移動度よりも正孔移動度の高い正孔輸送材料からなる正孔輸送領域と、正孔移動度よりも電子移動度の高い電子輸送材料からなる電子輸送領域と、を含み、かつ、前記正孔輸送領域は前記電子輸送領域よりも前記陽極側に位置し、なおかつ、前記正孔輸送領域と前記電子輸送領域との間に、前記正孔輸送材料および前記電子輸送材料の両方を含む混合領域が設けられていることを特徴とする発光装置。

【請求項 2】

陽極と、陰極と、前記陽極に接して設けられた正孔注入領域と、前記正孔注入領域および前記陰極の間に設けられた有機化合物膜と、からなる有機発光素子を含む発光装置において、前記有機化合物膜は、電子移動度よりも正孔移動度の高い正孔輸送材料からなる正孔輸送領域と、正孔移動度よりも電子移動度の高い電子輸送材料からなる電子輸送領域と、を含み、かつ、前記正孔輸送領域は前記電子輸送領域よりも前記陽極側に位置し、なおかつ、前記正孔輸送領域と前記電子輸送領域との間に、前記正孔輸送材料および前記電子輸送材料の両方を含む混合領域が設けられていることを特徴とする発光装置。

【請求項 3】

陽極と、陰極と、前記陰極に接して設けられた電子注入領域と、前記陽極および前記電子注入領域の間に設けられた有機化合物膜と、からなる有機発光素子を含む発光装置において、前記有機化合物膜は、電子移動度よりも正孔移動度の高い正孔輸送材料からなる正孔輸送領域と、正孔移動度よりも電子移動度の高い電子輸送材料からなる電子輸送領域と、を含み、かつ、前記正孔輸送領域は前記電子輸送領域よりも前記陽極側に位置し、なおかつ、前記正孔輸送領域と前記電子輸送領域との間に、前記正孔輸送材料および前記電子輸送材料の両方を含む混合領域が設けられていることを特徴とする発光装置。

【請求項 4】

陽極と、陰極と、前記陽極に接して設けられた正孔注入領域と、前記陰極に接して設けられた電子注入領域と、前記正孔注入領域および前記電子注入領域の間に設けられた有機化合物膜と、からなる有機発光素子を含む発光装置において、前記有機化合物膜は、電子移動度よりも正孔移動度の高い正孔輸送材料からなる正孔輸送領域と、正孔移動度よりも電子移動度の高い電子輸送材料からなる電子輸送領域と、を含み、かつ、前記正孔輸送領域は前記電子輸送領域よりも前記陽極側に位置し、なおかつ、前記正孔輸送領域と前記電子輸送領域との間に、前記正孔輸送材料および前記電子輸送材料の両方を含む混合領域が設けられていることを特徴とする発光装置。

【請求項 5】

請求項 1 乃至請求項 4 のいずれか一項に記載の発光装置において、前記陽極から前記陰極へ方向に対し、前記混合領域内の前記正孔輸送材料の濃度は減少し、前記混合領域内の前記電子輸送材料の濃度は増加していることを特徴とする発光装置。

【請求項 6】

請求項 1 乃至請求項 5 のいずれか一項に記載の発光装置において、前記混合領域は、10 ナノメートル以上、100 ナノメートル以下の厚さであることを特徴とする発光装置。

【請求項 7】

請求項 1 乃至請求項 6 のいずれか一項に記載の発光装置において、発光を呈する発光材料が、前記混合領域内に添加されていることを特徴とする発光装置。

【請求項 8】

請求項 1 乃至請求項 6 のいずれか一項に記載の発光装置において、発光を呈する発光材料が、前記混合領域内の一部に添加されていることを特徴とする発光装置。

【請求項 9】

請求項 1 乃至請求項 6 のいずれか一項に記載の発光装置において、前記正孔輸送材料および前記電子輸送材料に比べて最高被占分子軌道と最低空分子軌道との

エネルギー差が大きいブロッキング性材料が、前記混合領域内に添加されていることを特徴とする発光装置。

【請求項 1 0】

請求項 1 乃至請求項 6 のいずれか一項に記載の発光装置において、前記正孔輸送材料および前記電子輸送材料に比べて最高被占分子軌道と最低空分子軌道とのエネルギー差が大きいブロッキング性材料が、前記混合領域内の一部に添加されていることを特徴とする発光装置。

【請求項 1 1】

請求項 1 乃至請求項 6 のいずれか一項に記載の発光装置において、発光を呈する発光材料と、前記正孔輸送材料および前記電子輸送材料に比べて最高被占分子軌道と最低空分子軌道とのエネルギー差が大きいブロッキング性材料と、の両方が、前記混合領域内に添加されていることを特徴とする発光装置。

【請求項 1 2】

請求項 1 1 に記載の発光装置において、前記発光材料が添加されている領域は、前記ブロッキング性材料が添加されている領域よりも前記陽極側に位置することを特徴とする発光装置。

【請求項 1 3】

請求項 7 乃至請求項 8 または請求項 1 1 乃至請求項 1 2 のいずれか一項に記載の発光装置において、前記発光材料は、三重項励起状態からの発光を呈することを特徴とする発光装置。

【請求項 1 4】

請求項 1 乃至請求項 1 3 のいずれか一項に記載の発光装置を用いたことを特徴とする電気器具。

【発明の詳細な説明】

【0 0 0 1】

【発明の属する分野】

本発明は、陽極と、陰極と、電界を加えることで発光が得られる有機化合物を含む膜（以下、「有機化合物膜」と記す）と、を有する有機発光素子を用いた発光装置に関する。本発明では特に、従来よりも駆動電圧が低く、なおかつ素子の

寿命が長い有機発光素子を用いた発光装置に関する。なお、本明細書中における発光装置とは、発光素子として有機発光素子を用いた画像表示デバイスもしくは発光デバイスを指す。また、有機発光素子にコネクタ、例えば異方導電性フィルム (FPC: Flexible printed circuit) もしくはTAB (Tape Automated Bonding) テープもしくはTCP (Tape Carrier Package) が取り付けられたモジュール、TABテープやTCPの先にプリント配線板が設けられたモジュール、または有機発光素子にCOG (Chip On Glass) 方式によりIC (集積回路) が直接実装されたモジュールも全て発光装置に含むものとする。

【0002】

【従来の技術】

有機発光素子は、電界を加えることにより発光する素子である。その発光機構は、電極間に有機化合物膜を挟んで電圧を印加することにより、陰極から注入された電子および陽極から注入された正孔が有機化合物膜中の発光中心で再結合して分子励起子を形成し、その分子励起子が基底状態に戻る際にエネルギーを放出して発光すると言われている。

【0003】

なお、有機化合物が形成する分子励起子の種類としては、一重項励起状態と三重項励起状態が可能であるが、本明細書中ではどちらの励起状態が発光に寄与する場合も含むこととする。

【0004】

このような有機発光素子において、通常、有機化合物膜は $1\mu\text{m}$ を下回るほどの薄膜で形成される。また、有機発光素子は、有機化合物膜そのものが光を放出する自発光型の素子であるため、従来の液晶ディスプレイに用いられているようなバックライトも必要ない。したがって、有機発光素子は極めて薄型軽量に作製できることが大きな利点である。

【0005】

また、例えば $100\sim 200\text{nm}$ 程度の有機化合物膜において、キャリアを注入してから再結合に至るまでの時間は、有機化合物膜のキャリア移動度を考えると数十ナノ秒程度であり、キャリアの再結合から発光までの過程を含めてもマイクロ秒以

内のオーダーで発光に至る。したがって、非常に応答速度が速いことも特長の一つである。

【0006】

さらに、有機発光素子はキャリア注入型の発光素子であるため、直流電圧での駆動が可能であり、ノイズが生じにくい。駆動電圧に関しては、まず有機化合物膜の厚みを100nm程度の均一な超薄膜とし、また、有機化合物膜に対するキャリア注入障壁を小さくするような電極材料を選択し、さらにはヘテロ構造（二層構造）を導入することによって、5.5Vで100cd/m²の十分な輝度が達成された（文献1：C. W. Tang and S. A. VanSlyke, "Organic electroluminescent diodes", Applied Physics Letters, vol. 51, No.12, 913-915 (1987)）。

【0007】

こういった薄型軽量・高速応答性・直流低電圧駆動などの特性から、有機発光素子は次世代のフラットパネルディスプレイ素子として注目されている。また、自発光型であり視野角が広いことから、視認性も比較的良好であり、携帯機器の表示画面に用いる素子として有効と考えられている。

【0008】

ところで、文献1において示された有機発光素子の構成であるが、まず、有機化合物膜に対するキャリア注入障壁を小さくする方法として、仕事関数が低い上に比較的安定なMg:Ag合金を陰極に用い、電子の注入性を高めている。このことにより、有機化合物膜に大量のキャリアを注入することを可能としている。

【0009】

さらに有機化合物膜として、芳香族ジアミン化合物からなる正孔輸送層とトリス（8-キノリノラト）-アルミニウム（以下、「Alq₃」と記す）からなる電子輸送性発光層とを積層するという、シングルヘテロ構造を適用することにより、キャリアの再結合効率を飛躍的に向上させている。このことは、以下のように説明される。

【0010】

例えば、Alq₃単層のみを有する有機発光素子の場合では、Alq₃が電子輸送性であるため、陰極から注入された電子のほとんどは正孔と再結合せずに陽極に達し

てしまい、発光の効率は極めて悪い。すなわち、単層の有機発光素子を効率よく発光させる（あるいは低電圧で駆動する）ためには、電子および正孔の両方をバランスよく輸送できる材料（以下、「バイポーラー材料」と記す）を用いる必要があり、Alq₃はその条件を満たしていない。

【0011】

しかし、文献1のようなシングルヘテロ構造を適用すれば、陰極から注入された電子は正孔輸送層と電子輸送性発光層との界面でブロックされ、電子輸送性発光層中へ閉じこめられる。したがって、キャリアの再結合が効率よく電子輸送性発光層で行われ、効率のよい発光に至るのである。

【0012】

このようなキャリアのブロッキング機能の概念を発展させると、キャリアの再結合領域を制御することも可能となる。その例として、正孔をブロックできる層（正孔ブロッキング層）を正孔輸送層と電子輸送層との間に挿入することにより、正孔を正孔輸送層内に閉じこめ、正孔輸送層の方を発光させることに成功した報告がある。（文献2：Yasunori KIJIMA, Nobutoshi ASAI and Shin-ichiro TAMURA, "A Blue Organic Light Emitting Diode", Japanese Journal of Applied Physics, Vol. 38, 5274-5277(1999)）。

【0013】

また、文献1における有機発光素子は、いわば正孔の輸送は正孔輸送層が行い、電子の輸送および発光は電子輸送性発光層が行うという、機能分離が行われていると言える。この機能分離の概念はさらに、正孔輸送層と電子輸送層の間に発光層を挟むというダブルヘテロ構造（三層構造）の構想へと発展した（文献3：Chihaya ADACHI, Shizuo TOKITO, Tetsuo TSUTSUI and Shogo SAITO, "Electroluminescence in Organic Films with Three-Layered Structure", Japanese Journal of Applied Physics, Vol. 27, No. 2, L269-L271(1988)）。

【0014】

こういった機能分離の利点としては、機能分離することによって一種類の有機材料に様々な機能（発光性、キャリア輸送性、電極からのキャリア注入性など）を同時に持たせる必要がなくなり、分子設計等に幅広い自由度を持たせることが

できる点にある（例えば、無理にバイポーラー材料を探索する必要がなくなる）。つまり、発光特性のいい材料、キャリア輸送性が優れる材料などを、各々組み合わせることで、容易に高発光効率が達成できるということである。

【0015】

これらの利点から、文献1で述べられた積層構造の概念（キャリアブロッキング機能あるいは機能分離）自体は、現在に至るまで広く利用されている。

【0016】

【発明が解決しようとする課題】

しかしながら、以上で述べたような積層構造は異種物質間の接合であるため、各層間に界面（以下、「有機界面」と記す）を生じることになる。有機界面を形成することに起因する問題点として、以下に述べるような二つの問題点が提起される。

【0017】

まず一つは、駆動電圧のさらなる低減へ向けての障害になるという点である。実際、現在の有機発光素子において、駆動電圧に関しては共役ポリマーを用いた単層構造の素子の方が優れており、パワー効率（単位：[lm/W]）でのトップデータ（ただし、一重項励起状態からの発光を比較）を保持していると報告されている（文献4：筒井哲夫、「応用物理学会有機分子・バイオエレクトロニクス分科会会誌」、Vol. 11、No. 1、P.8（2000））。

【0018】

なお、文献4で述べられている共役ポリマーはバイポーラー材料であり、キャリアの再結合効率に関しては積層構造と同等なレベルが達成できる。したがって、バイポーラー材料を用いるなどの方法で、積層構造を用いることなくキャリアの再結合効率さえ同等にできるのであれば、有機界面の少ない単層構造の方が実際は駆動電圧が低くなることを示している。

【0019】

このことは、有機界面においてキャリアの移動が妨げられ、より高い駆動電圧が必要になってしまったと説明できる。この有機界面におけるキャリアの移動性に関してはいまだ未解決の分野であり、単層構造の低駆動電圧に追いつくための

重要なポイントであると考えられる。

【0020】

さらに、有機界面に起因するもう一つの問題点として、有機発光素子の素子寿命に対する影響が考えられる。すなわち、有機界面においてキャリアの移動が妨げられ、チャージが蓄積することによる輝度の低下である。

【0021】

この劣化機構に関してははっきりした理論は確立されていないが、陽極と正孔輸送層との間に正孔注入層を挿入し、さらにdc駆動ではなく矩形波のac駆動にすることによって、輝度の低下を抑えることができるという報告がある（文献5：S. A. VanSlyke, C. H. Chen, and C. W. Tang, "Organic electroluminescent devices with improved stability", Applied Physics Letters, Vol. 69, No. 15, 2160-2162(1996)）。このことは、正孔注入層の挿入およびac駆動によって、チャージの蓄積を排除することにより、輝度の低下を抑えることができたという実験的な裏付けと言える。

【0022】

以上のことから、積層構造は容易にキャリアの再結合効率を高めることができ、なおかつ機能分離の観点から材料の選択幅を広くできるというメリットを持つ一方で、有機界面（特にキャリアをブロックしてキャリアを再結合させるための有機界面）を作り出すことによってキャリアの移動を妨げ、駆動電圧や輝度の低下に影響を及ぼしていると言える。

【0023】

そこで本発明では、従来用いられている積層構造とは異なる概念の素子を作製することにより、有機化合物膜中に存在する有機界面を削除してキャリアの移動性を高めると同時に、なおかつ積層構造の機能分離と同様に各種複数の材料の機能を発現させる（以下、「機能発現」と記す）ことを課題とする。それにより、従来よりも駆動電圧が低い上に素子の寿命が長い有機発光素子を提供することを課題とする。

【0024】

また、このような有機発光素子を用いることにより、従来よりも駆動電圧が低

く、なおかつ寿命の長い発光装置を提供することを課題とする。さらに、前記発光装置を用いて電気器具を作製することにより、従来よりも低消費電力で、なおかつ長保ちする電気器具を提供することを課題とする。

【0025】

【課題を解決するための手段】

有機界面の形成によりキャリアの移動が妨げられるモデルとして、本発明者は以下に述べるような二つの機構を考えた。

【0026】

まず一つの機構として、有機界面のモルフォロジーから生じるものが考えられる。有機発光素子における有機化合物膜は通常、アモルファス状態の膜であり、これは有機化合物の分子同士が、双極子相互作用を主とした分子間力で凝集することにより形成されている。ところが、このような分子の凝集体を用いてヘテロ構造を形成すると、分子のサイズや形状の違いがヘテロ構造の界面（すなわち有機界面）に大きな影響を及ぼす可能性がある。

【0027】

特に、分子のサイズが大きく異なる材料を用いてヘテロ構造を形成した場合、その有機界面における接合の整合性が悪くなると考えられる。その概念図を図1に示す。図1では、小さい分子101からなる第一の層111と、大きい分子102からなる第二の層112を積層している。この場合、形成される有機界面113において、整合性の悪い領域114が発生してしまう。

【0028】

図1で示した整合性の悪い領域114は、キャリアの移動を妨げるバリア（あるいはエネルギー障壁）となる可能性があるため、駆動電圧のさらなる低減へ向けての障害になることが示唆される。また、エネルギー障壁を越えられないキャリアはチャージとして蓄積してしまい、先に述べたような輝度の低下を誘起してしまう可能性がある。

【0029】

もう一つの機構として、積層構造を形成する（すなわち有機界面を形成する）工程から生じるものが考えられる。積層構造の有機発光素子は、キャリアのプロ

ッキングおよび機能分離の観点から、各層を形成する際のコンタミネーションを避けるため、通常、図2に示すようなマルチチャンバー方式（インライン方式）の蒸着装置を用いて作製する。

【0030】

図2に示した例は、正孔輸送層・発光層・電子輸送層の三層構造（ダブルヘテロ構造）を形成するための蒸着装置の概念図である。まず、搬入室に陽極（インジウム錫酸化物（以下、「ITO」と記す）など）を有する基板を搬入し、まず紫外線照射室において真空雰囲気中で紫外線を照射することにより、陽極表面をクリーニングする。特に陽極がITOのような酸化物である場合、前処理室にて酸化処理を行う。さらに、積層構造の各層を形成するため、蒸着室201で正孔輸送層を、蒸着室202～204で発光層（図2では、赤、緑、青の三色）を、蒸着室205で電子輸送層を成膜し、蒸着室206で陰極を蒸着する。最後に、封止室にて封止を行い、搬出室から取り出して有機発光素子を得る。

【0031】

このようなインライン方式の蒸着装置の特色としては、各層の蒸着を、それぞれ異なる蒸着室201～205において蒸着していることである。つまり、各層の材料がほとんど互いに混入しないような装置構成となっている。

【0032】

ところで、蒸着装置の内部は通常 $10^{-4} \sim 10^{-5}$ パスカ程度に減圧されているものの、極微量の気体成分（酸素や水など）は存在している。そして、この程度の真空度の場合、それら極微量の気体成分でも、数秒もあれば容易に単分子レイヤー程度の吸着層を形成してしまうと言われている。

【0033】

したがって、図2のような装置を用いて積層構造の有機発光素子を作製する場合、各層を形成する間に大きなインターバルが生じてしまうことが問題なのである。つまり、各層を形成する間のインターバル、特に第二搬送室を経由して搬送する際などに、極微量の気体成分による吸着層（以下、「不純物層」と記す）を形成してしまう懸念がある。

【0034】

このようにして各層間（すなわち有機界面）に形成されてしまう不純物層は、有機発光素子の完成後、キャリアをトラップする不純物領域となってキャリアの移動を妨げるため、やはり駆動電圧を上昇させてしまう。さらに、キャリアをトラップする不純物領域が存在すると、そこにはチャージが蓄積することになるため、先に述べたような輝度の低下を誘起してしまう可能性がある。

【0035】

このような機構から考えると、以上で述べたような有機界面で生じる問題点（有機界面のモルフォロジー悪化および不純物層の形成）を克服するためには、素子構造・作製工程共に、従来の積層構造素子から脱する必要がある。例えば、有機界面を完全に排除した有機発光素子の例として、正孔輸送材料と電子輸送材料とを混合しただけの単層（以下、「混合単層」と記す）のみを、両電極間に設けた有機発光素子の報告がある（文献6：Shigeki NAKA, Kazuhisa SHINNO, Hiroyuki OKADA, Hiroshi ONNAGAWA and Kazuo MIYASHITA, "Organic Electroluminescent Devices Using a Mixed Single Layer", Japanese Journal of Applied Physics, Vol. 33, No. 12B, L1772-L1774(1994)）。

【0036】

文献6では、正孔輸送性である4, 4'-ビス[N-(3-メチルフェニル)-N-フェニル-アミノ]-ビフェニル（以下、「TPD」と記す）と、電子輸送性であるAlq₃とを、1:4の割合で混合することによって単層構造を形成している。しかしながら、積層構造（すなわち、TPDおよびAlq₃からなる有機界面を形成するヘテロ構造）との比較をすると、発光効率の点では積層構造に比べて劣っていることが示されている。

【0037】

その原因として、混合単層の場合、陽極から注入された正孔および陰極から注入された電子が、再結合することなくそのまま対極へ抜けてしまうことが多くなるためと考えられる。積層構造はキャリアのブロッキング機能があるので、そのような問題は生じていないのである。

【0038】

このことは、文献6の混合単層においては、機能発現が行われていないことが

原因と言い換えることができる。すなわち、有機化合物膜内において、陽極に近い領域は正孔輸送という機能を示し、陰極に近い領域は電子輸送という機能を示し、両電極から離れた部分に発光領域（すなわちキャリアが再結合する領域）を設けるといふ、各機能を発現できる領域を設けなければ、たとえ有機界面をなくしたとしても効率のよい発光には至らないのである。

【0039】

これらのことを考慮し、本発明者は、有機界面を排除し、なおかつ文献6とは異なり機能発現が可能な有機発光素子を実現する手法を考案した。その概念図を図3に示す。

【0040】

図3では、正孔輸送材料および電子輸送材料の2種類からなる有機化合物膜303において、正孔輸送材料からなる正孔輸送領域305、電子輸送材料からなる電子輸送領域306、および正孔輸送材料と電子輸送材料とが混合された混合領域307を設けてある。ここでは基板301上に陽極302を設けてあるが、陰極304の方を基板上に設ける逆の構造をとってもよい。

【0041】

このような素子を形成した場合、陽極側では正孔輸送材料が正孔を受け取り輸送し、一方陰極側では電子輸送材料が電子を受け取り輸送することができる。さらに、混合領域307はバイポーラー性であるため、正孔および電子は双方とも混合領域307を移動することができ、この混合領域307においてキャリアは再結合し発光に至る。すなわち、文献6の混合単層とは異なり、各機能を発現できる領域が有機化合物膜303内に存在していることになる。

【0042】

さらに、図3のような素子の場合、機能発現を可能にしながら、なおかつ従来の積層構造のような有機界面は存在しない。したがって、上述の有機界面で生じる問題点（有機界面のモルフォロジー悪化および不純物層の形成）を解決することができる。

【0043】

まず、有機界面のモルフォロジー悪化の解決について、図4を用いて説明する

。図4は、小さい分子401からなる領域411と、大きい分子402からなる領域412と、小さい分子401および大きい分子402の両方を含む混合領域413と、からなる、本発明で開示する有機発光素子である。図4から明らかなように、図1で存在していたような有機界面113は存在せず、整合性の悪い領域114も存在しない。

【0044】

また、不純物層の形成の解決であるが、これは単純明快である。図3のような有機発光素子を作製する場合、陽極上に正孔輸送材料を蒸着し、途中からそれに加えて電子輸送材料を共蒸着の形で蒸着することで混合領域を形成し、混合領域を形成後は正孔輸送材料の蒸着を止めることで電子輸送材料を蒸着すればよい。したがって、図2のような蒸着装置を用いて有機発光素子を作製する際に生じる、インターバルが存在しない。つまり、不純物層を形成する隙を与えることがないのである。

【0045】

このように、本発明の有機発光素子は、有機界面を形成することがないためキャリアの移動が潤滑であり、駆動電圧および素子の寿命に悪影響を及ぼすことがなくなる。さらに、積層構造と同様に機能分離されているため、発光効率の点でも問題はない。

【0046】

また、従来の積層構造が異種物質間の単なる接合 (hetero-junction) であるのに対し、本発明の構造はいわば混合接合 (mixed-junction) であり、新しい概念に基づく有機発光素子であると言える。

【0047】

したがって本発明では、陽極と、陰極と、前記陽極および前記陰極の間に設けられた有機化合物膜と、からなる有機発光素子を含む発光装置において、前記有機化合物膜は、電子移動度よりも正孔移動度の高い正孔輸送材料からなる正孔輸送領域と、正孔移動度よりも電子移動度の高い電子輸送材料からなる電子輸送領域と、を含み、かつ、前記正孔輸送領域は前記電子輸送領域よりも前記陽極側に位置し、なおかつ、前記正孔輸送領域と前記電子輸送領域との間に、前記正孔輸送材料および前記電子輸送材料の両方を含む混合領域が設けられていることを特

徴とする（請求項1）。

【0048】

なお、図3において、陽極と有機化合物膜との間に、正孔の注入性を高める材料（以下、「正孔注入材料」と記す）からなる正孔注入領域を挿入してもよい（請求項2）。また、陰極と有機化合物膜との間に、電子の注入性を高める材料（以下、「電子注入材料」と記す）からなる電子注入領域を挿入してもよい（請求項3）。さらに、正孔注入領域と電子注入領域の両方を組み込んでもよい（請求項4）。

【0049】

この場合、正孔注入材料または電子注入材料は、電極から有機化合物膜へのキャリア注入障壁を小さくするための材料であるため、電極から有機化合物膜へのキャリアの移動を潤滑にし、チャージの蓄積を排除できる効果がある。ただし、先に述べたような不純物層の形成を避ける観点から、各注入材料と有機化合物膜との間は、インターバルをおかずに成膜することが好ましい。

【0050】

ところで、正孔輸送材料および電子輸送材料の両方を含む混合領域内において、陽極から陰極への方向に対し、正孔輸送材料の濃度は徐々に減少し、かつ、電子輸送材料の濃度は徐々に増加するような濃度勾配を形成することが、キャリアバランス制御の観点から好ましい（請求項5）。また、本発明において、混合領域はキャリアの再結合領域でもあるため、10nm以上の厚みがあることが望ましい（請求項6）。

【0051】

また、図5(a)に示すように、有機化合物膜503において、正孔輸送材料からなる正孔輸送領域505、電子輸送材料からなる電子輸送領域506、および正孔輸送材料と電子輸送材料とが混合された混合領域507を設け、さらに混合領域507に対し、ドーパントとして発光を呈する発光材料508を添加する構造も本発明に含むこととする（請求項7）。なお、ここでは基板501上に陽極502を設けてあるが、陰極504の方を基板上に設ける逆の構造をとってもよい。また、正孔注入領域や電子注入領域を、電極と有機化合物膜との間に設けていてもよい。

【 0 0 5 2 】

発光材料508を混合領域507にドープすると、発光材料508がキャリアをトラップするため再結合率が向上し、高い発光効率が期待できる。発光色を発光材料508により制御できることも利点の一つと言える。ただしこの場合、発光材料508における最高被占分子軌道と最低空分子軌道とのエネルギー差（以下、「励起エネルギーレベル」と記す）は、混合領域507に含まれる化合物の中で最も小さいことが好ましい。

【 0 0 5 3 】

また、発光領域は両電極からなるべく離すことで、電極材料にエネルギー移動することによる消光（以下、「クエンチ」と記す）を防ぐことができる。したがって、発光材料をドープする領域は、混合領域内の全域ではなく、一部（特に中央部）であってもよい（請求項8）。

【 0 0 5 4 】

さらに、図5(b)に示すように、有機化合物膜503において、正孔輸送材料からなる正孔輸送領域505、電子輸送材料からなる電子輸送領域506、および正孔輸送材料と電子輸送材料とが混合された混合領域507を設け、さらに混合領域507に対し、ブロッキング性材料509を添加する構造も本発明に含むこととする（請求項9）。なお、ここでは基板501上に陽極502を設けてあるが、陰極504の方を基板上に設ける逆の構造をとってもよい。また、正孔注入領域や電子注入領域を、電極と有機化合物膜との間に設けていてもよい。

【 0 0 5 5 】

本明細書におけるブロッキング性とは、キャリアをブロックする機能ないしは分子励起子の拡散を防ぐ機能のことである。ブロッキング性材料509を混合領域507にドープすると、混合領域507におけるキャリアの再結合率が向上し、分子励起子の拡散も防げるため、高い発光効率が期待できる。ただしこの場合、ブロッキング性材料における励起エネルギーレベルは、混合領域507に含まれる材料の中で最も大きいことが好ましい。

【 0 0 5 6 】

また、ブロッキング性材料は、正孔ないしは電子の片方をブロックする機能を

有する場合が多いため、混合領域内全域にドーピングしてしまうと、混合領域内のキャリアバランスを崩すこともある。したがって、ブロッキング性材料をドーピングする領域は、混合領域内の全域ではなく、一部（特に端部）であってもよい（請求項10）。

【0057】

なお、図5(b)においては、さらに好ましい例として、発光材料508も添加している（請求項11）。すなわち、図5(a)と併合した形態である。ブロッキング性材料509が正孔ブロッキング性を有する場合は、図5(b)のように、発光材料508を添加している領域よりも陰極側に正孔ブロッキング性材料を添加すれば、発光材料が効率よく発光することになる（請求項12）。

【0058】

ところで近年、発光効率の観点から、三重項励起状態から基底状態に戻る際に放出されるエネルギー（以下、「三重項励起エネルギー」と記す）を発光に変換できる有機発光素子が、その高い発光効率ゆえに注目されている（文献7：D. F. O'Brien, M. A. Baldo, M. E. Thompson and S. R. Forrest, "Improved energy transfer in electrophosphorescent devices", Applied Physics Letters, vol. 74, No. 3, 442-444 (1999)）（文献8：Tetsuo TSUTSUI, Moon-Jae YANG, Masayuki YAHIRO, Kenji NAKAMURA, Teruichi WATANABE, Taishi TSUJI, Yoshinori FUKUDA, Takeo WAKIMOTO and Satoshi MIYAGUCHI, "High Quantum Efficiency in Organic Light-Emitting Devices with Iridium-Complex as a Triplet Emissive Center", Japanese Journal of Applied Physics, Vol. 38, L1502-L1504 (1999)）。

【0059】

文献7では白金を中心金属とする金属錯体を、文献8ではイリジウムを中心金属とする金属錯体を用いている。これらの三重項励起エネルギーを発光に変換できる有機発光素子（以下、「三重項発光素子」と記す）は、従来よりも高輝度発光・高発光効率を達成することができる。

【0060】

しかしながら、文献8の報告例によると、初期輝度を 500cd/m^2 に設定した場合

の輝度の半減期は170時間程度であり、素子寿命に問題がある。三重項発光素子は、発光材料に対する適切なホスト材料、および分子励起子の拡散を防ぐブロッキング性材料が必要であるため、多層構造になっており、有機界面が多数生じてしまうことが素子寿命の短い原因と考えられる。

【0061】

そこで、本発明を三重項発光素子に適用することにより、三重項励起状態からの発光による高輝度発光・高発光効率に加え、素子の寿命も長いという非常に高機能な発光素子が可能となる（請求項13）。

【0062】

なお、三重項の分子励起子は、拡散長が一重項の分子励起子に比べて大きいいため、ブロッキング性材料が混合領域に含まれていることが好ましい。すなわち、図5(b)を用いて説明すると、発光材料508として三重項励起エネルギーを発光に変換できる材料（以下、「三重項発光材料」と記す）を用い、ブロッキング性材料509も同時に添加することが望ましい。

【0063】

【発明の実施の形態】

以下では、本発明を実施する際の形態について述べる。なお、有機発光素子は、発光を取り出すために少なくとも陽極または陰極の一方が透明であればよいが、本実施の形態では、基板上に透明な陽極を形成し、陽極から光を取り出す素子構造で記述する。実際は、陰極から光を取り出す構造や、基板とは逆側から光を取り出す構造も本発明に適用可能である。

【0064】

本発明を実施するに当たり、不純物層の形成を防ぐため、有機発光素子を作製する製造工程が重要になる。そこでまず、本発明で開示する有機発光素子を用いた発光装置の製造方法について述べる。

【0065】

本発明の有機発光素子を作製する蒸着装置の概念図を、図6に示す。図6(a)はその上面図であるが、蒸着室として一つの真空槽610を設置し、その真空槽内に複数の蒸着源を設けてある、シングルチャンバー方式である。そして、正孔注

入材料、正孔輸送材料、電子輸送材料、電子注入材料、ブロッキング性材料、発光材料、陰極の構成材料など、各種機能の異なる材料が、それぞれ前記複数の蒸着源に別々に収納されている。

【 0 0 6 6 】

このような蒸着室を有する蒸着装置においては、まず、搬入室に陽極（ITOなど）を有する基板を搬入し、陽極がITOのような酸化物である場合、前処理室にて酸化処理を行う（なお、図 6 (a) では図示していないが、陽極表面をクリーニングするために紫外線照射室を設置することも可能である）。さらに、有機発光素子を形成する全ての材料は、真空槽 610 内において蒸着される。ただし陰極は、この真空槽 610 内で形成してもよいし、別に蒸着室を設けてそこで陰極を形成してもよい。要は、陰極を形成するまでの間を、一つの真空槽 610 内で蒸着すればよい。最後に、封止室にて封止を行い、搬出室から取り出して有機発光素子を得る。

【 0 0 6 7 】

このようなシングルチャンバー方式の蒸着装置を用いて本発明の有機発光素子を作製する手順を、図 6 (b)（真空槽 610 の断面図）を用いて説明する。図 6 (b) では、図面簡略化のため、二つの蒸着源（有機化合物蒸着源 a618 および有機化合物蒸着源 b619）を有する真空槽 610 を用い、正孔輸送材料 616 および電子輸送材料 617 からなる有機化合物膜を形成する過程を示す。

【 0 0 6 8 】

まず、真空槽 610 内に、陽極 602 を有する基板 601 を搬入し、固定台 611 にて固定する（蒸着時には通常、基板は回転させる）。次に、真空槽 610 内を減圧（ 10^{-4} パスカル以下が好ましい）した後、容器 a612 を加熱し、正孔輸送材料 616 を蒸発させ、所定の蒸着レート（単位：[Å/s]）に達してからシャッター a614 を開け、蒸着を開始する。この時、シャッター b615 を閉じたまま、容器 b613 も加熱しておく。

【 0 0 6 9 】

その後、シャッター a614 を開いたまま、シャッター b615 を開けることによって、電子輸送材料 617 を共蒸着し（図 6 (b) で示した状態）、正孔輸送領域 603 の後

に混合領域604を形成する。この操作により、正孔輸送領域603と混合領域604との間には、不純物層が混入しない。

【0070】

さらに電子輸送領域を形成するため、シャッターb615を開けたままシャッターa614を閉じ、容器a612の加熱を終了する。この操作により、混合領域604と電子輸送領域との間には、不純物層が形成されない。

【0071】

この方法を応用すれば、課題を解決するための手段で述べた有機発光素子は、全て作製可能である。例えば、混合領域604に発光材料をドーピングする場合は、図6(b)にその発光材料を蒸着するための蒸着源を設置し、混合領域の形成中に発光材料を微量蒸発させればよい。

【0072】

また、正孔注入領域または電子注入領域を形成する場合でも、各注入材料の蒸着源を同一の真空槽610内に設置すればよい。例えば図6(b)において、陽極602と正孔輸送領域603の間に正孔注入領域を設ける場合は、陽極602上に正孔注入材料を蒸着した後、インターバルをおかずにすぐ正孔輸送材料616を蒸発させることで、不純物層の形成を避けることができる。

【0073】

次に、正孔注入材料、正孔輸送材料、電子輸送材料、電子注入材料、ブロッキング性材料、発光材料、陰極の構成材料などに好適な材料を以下に列挙する。ただし、本発明の有機発光素子に用いる材料は、これらに限定されない。

【0074】

正孔注入材料としては、有機化合物であればポルフィリン系の化合物が有効であり、フタロシアニン（以下、「H2Pc」と記す）、銅フタロシアニン（以下、「CuPc」と記す）などがある。導電性高分子化合物に化学ドーピングを施した材料もあり、ポリスチレンスルホン酸（以下、「PSS」と記す）をドーピングしたポリエチレンジオキシチオフェン（以下、「PEDOT」と記す）や、ポリアニリン、ポリビニルカルバゾール（以下、「PVK」と記す）などが挙げられる。また、絶縁体の高分子化合物も陽極の平坦化の点で有効であり、ポリイミド（以下、「PI」と

記す)がよく用いられる。さらに、無機化合物も用いられ、金や白金などの金属薄膜の他、酸化アルミニウム(以下、「アルミナ」と記す)の超薄膜などがある。

【0075】

正孔輸送材料として最も広く用いられているのは、芳香族アミン系(すなわち、ベンゼン環-窒素の結合を有するもの)の化合物である。広く用いられている材料として、先に述べたTPDの他、その誘導体である4, 4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニル-アミノ]-ビフェニル(以下、「 α -NPD」と記す)や、4, 4', 4'''-トリス(N, N-ジフェニル-アミノ)-トリフェニルアミン(以下、「TDATA」と記す)、4, 4', 4'''-トリス[N-(3-メチルフェニル)-N-フェニル-アミノ]-トリフェニルアミン(以下、「MTDATA」と記す)などのスターバースト型芳香族アミン化合物が挙げられる。

【0076】

電子輸送材料としては、金属錯体がよく用いられ、先に述べたAlq₃、トリス(4-メチル-8-キノリノラト)アルミニウム(以下、「Almq₃」と記す)、ビス(10-ヒドロキシベンゾ[h]-キノリナト)ベリリウム(以下、「BeBq₂」と記す)などのキノリン骨格またはベンゾキノリン骨格を有する金属錯体や、混合配位子錯体であるビス(2-メチル-8-キノリノラト)-(4-ヒドロキシ-ビフェニル)-アルミニウム(以下、「BAIq」と記す)などがある。また、ビス[2-(2-ヒドロキシフェニル)-ベンゾオキサゾラト]亜鉛(以下、「Zn(BOX)₂」と記す)、ビス[2-(2-ヒドロキシフェニル)-ベンゾチアゾラト]亜鉛(以下、「Zn(BTZ)₂」と記す)などのオキサゾール系、チアゾール系配位子を有する金属錯体もある。さらに、金属錯体以外にも、2-(4-ビフェニル)-5-(4-tert-ブチルフェニル)-1, 3, 4-オキサジアゾール(以下、「PBD」と記す)、1, 3-ビス[5-(p-tert-ブチルフェニル)-1, 3, 4-オキサジアゾール-2-イル]ベンゼン(以下、「OXD-7」と記す)などのオキサジアゾール誘導体、3-(4-tert-ブチルフェニル)-4-フェニル-5-(4-ビフェニル)-1, 2, 4-トリアゾール(以下、「TAZ」と記す)、3-(4-tert-ブチルフェニル)-4-(4-エチルフェニル)-

5-(4-ビフェニル)-1,2,4-トリアゾール(以下、「p-EtTAZ」と記す)などのトリアゾール誘導体、バソフェナントロリン(以下、「BPhen」と記す)・バソキュプロイン(以下、「BCP」と記す)などのフェナントロリン誘導体が電子輸送性を有する。

【0077】

電子注入材料としては、上で述べた電子輸送材料を用いることができる。その他に、フッ化リチウムなどのアルカリ金属ハロゲン化物や、酸化リチウムなどのアルカリ金属酸化物のような絶縁体の、超薄膜がよく用いられる。また、リチウムアセチルアセトネート(以下、「Li(acac)」と記す)や8-キノリノラトリーチウム(以下、「LiQ」と記す)などのアルカリ金属錯体も有効である。

【0078】

ブロッキング性材料としては、上で述べたBAIq、OXD-7、TAZ、p-EtTAZ、BPhen、BCPなどが、励起エネルギーが高いため有効である。

【0079】

発光性材料としては、先に述べたAlq₃、Almq₃、BeBq₂、BAIq、Zn(BOX)₂、Zn(BTZ)₂などの金属錯体の他、各種蛍光色素が有効である。また、三重項発光材料も可能であり、白金ないしはイリジウムを中心金属とする錯体が主体である。三重項発光材料としては、トリス(2-フェニルピリジン)イリジウム(以下、「Ir(ppy)₃」と記す)、2,3,7,8,12,13,17,18-オクタエチル-21H,23H-ポルフィリン-白金(以下、「PtOEP」と記す)などが知られている。

【0080】

以上で述べたような各機能を有する材料を、各々組み合わせ、本発明の有機発光素子に適用することにより、従来よりも駆動電圧が低い上に素子の寿命が長い有機発光素子を作製することができる。

【0081】

【実施例】

[実施例1]

本実施例では、図3で示した有機発光素子において、陽極302と有機化合物膜3

03との間に正孔注入材料からなる正孔注入領域を挿入した有機発光素子を、具体的に例示する。

【0082】

まず、ITOをスパッタリングによって100nm程度成膜し、陽極302を形成したガラス基板301を用意する。この陽極302を有するガラス基板301を、図6において示したような真空槽内に搬入する。本実施例では、4種類の材料（3種類は有機化合物であり、1種類は陰極となる金属）を蒸着するため、4つの蒸着源が必要となる。

【0083】

まず、正孔注入材料であるCuPcを20nm蒸着するが、20nmに達してCuPcの蒸着を終えると同時に、インターバルをおかずに、正孔輸送材料である α -NPDの蒸着を3 Å/sの蒸着レートで開始する。インターバルをおかない理由は、先に述べたように、不純物層の形成を防ぐためである。

【0084】

α -NPDのみからなる正孔輸送領域305を30nm形成した後、 α -NPDの蒸着レートは3 Å/sに固定したまま、電子輸送材料であるAlq₃の蒸着も3 Å/sにて開始する。すなわち、 α -NPDとAlq₃の比率が1 : 1となるような混合領域307を、共蒸着にて形成することになる。

【0085】

混合領域307が30nmに達した後、 α -NPDの方は蒸着を終了し、Alq₃のみ引き続き蒸着し続けることで、電子輸送領域306を形成する。厚さは40nmとする。最後に、陰極としてAl:Li合金を150nm程度蒸着することにより、Alq₃に由来する緑色発光の有機発光素子を得る。

【0086】

〔実施例2〕

本実施例では、図5(a)で示した有機発光素子を、具体的に例示する。

【0087】

まず、ITOをスパッタリングによって100nm程度成膜し、陽極502を形成したガラス基板501を用意する。この陽極502を有するガラス基板501を、図6において

示したような真空槽内に搬入する。本実施例では、4種類の材料（3種類は有機化合物であり、1種類は陰極となる金属）を蒸着するため、4つの蒸着源が必要となる。

【0088】

まず、正孔輸送材料である α -NPDのみからなる正孔輸送領域505を40nm形成した後、 α -NPDの蒸着レートは3 Å/sに固定したまま、電子輸送材料であるAlq₃の蒸着も3 Å/sにて開始する。すなわち、 α -NPDとAlq₃の比率が1:1となるような混合領域507を、共蒸着にて形成することになる。

【0089】

混合領域507は30nm形成するが、この時、混合領域507における中間の10nm（つまり、混合領域30nmのうち、10nm～20nmの間）は、蛍光色素である4-（ジシアノメチレン）-2-メチル-6-（p-ジメチルアミノスチリル）-4H-ピラン（以下、「DCM」と記す）を、発光材料508として1wt%の割合でドーピングしておく。

【0090】

混合領域が30nmに達した後、 α -NPDの方は蒸着を終了し、Alq₃のみ引き続き蒸着し続けることで、電子輸送領域506を形成する。厚さは40nmとする。最後に、陰極としてAl:Li合金を150nm程度蒸着することにより、DCMに由来する赤色発光の有機発光素子を得る。

【0091】

【実施例3】

本実施例では、図5(b)で示した有機発光素子において、陽極502と有機化合物膜503との間に正孔注入材料からなる正孔注入領域を挿入し、陰極504と有機化合物膜503との間に電子注入材料からなる電子注入領域を挿入した有機発光素子を、具体的に例示する。

【0092】

まず、ITOをスパッタリングによって100nm程度成膜し、陽極502を形成したガラス基板501を用意する。この陽極502を有するガラス基板501を、図6において示したような真空槽内に搬入する。本実施例では、7種類の材料（6種類は有機

化合物であり、1種類は陰極となる金属)を蒸着するため、7つの蒸着源が必要となる。

【0093】

まず、正孔注入材料であるCuPcを20nm蒸着するが、20nmに達してCuPcの蒸着を終えると同時に、インターバルをおかずに、正孔輸送材料であるTPDの蒸着を2 Å/sの蒸着レートで開始する。インターバルをおかない理由は、先に述べたように、不純物層の形成を防ぐためである。

【0094】

TPDのみからなる正孔輸送領域505を30nm形成した後、TPDの蒸着レートは2 Å/sに固定したまま、電子輸送材料であるBeBq₂の蒸着も8 Å/sにて開始する。すなわち、TPDとBeBq₂の比率が1 : 4となるような混合領域507を、共蒸着にて形成することになる。

【0095】

混合領域507は30nm形成するが、この時、混合領域507における中間の10nm(つまり、混合領域30nmのうち、10nm~20nmの間)は、蛍光色素であるルブレンを、発光材料508として5wt%の割合でドーピングしておく。また、混合領域507における最後の10nm(つまり、混合領域30nmのうち、20nm~30nmの間)は、ブロッキング性材料509として、BCPをドーピングしておく。BCPドーピング時の各材料の蒸着レート比は、TPD : BeBq₂ : BCP = 1 : 4 : 3 [Å/s] とする。

【0096】

混合領域307が30nmに達した後、TPDおよびBCPの方は蒸着を終了し、BeBq₂のみ引き続き蒸着し続けることで、電子輸送領域506を形成する。厚さは40nmとする。BeBq₂の蒸着を終了すると同時に、インターバルをおかずに、電子注入材料であるLi(acac)の蒸着を開始して2nm程度蒸着する。インターバルをおかない理由は、先に述べたように、不純物層の形成を防ぐためである。

【0097】

最後に、陰極としてアルミニウムを150nm程度蒸着することにより、ルブレンに由来する黄色発光の有機発光素子を得る。

【0098】

[実施例 4]

本実施例では、三重項発光材料を本発明の有機発光素子に適用した例を、具体的に例示する。その素子構造を図 7 に示す。

【0099】

まず、ITO をスパッタリングによって 100nm 程度成膜し、ITO (陽極) を形成したガラス基板を用意する。この ITO を有するガラス基板を、図 6 において示したような真空槽内に搬入する。本実施例では、6 種類の材料 (5 種類は有機化合物であり、1 種類は陰極となる金属) を蒸着するため、6 つの蒸着源が必要となる。

【0100】

まず、正孔注入材料である CuPc を 20nm 蒸着するが、20nm に達して CuPc の蒸着を終えると同時に、インターバルをおかずに、正孔輸送材料である α -NPD の蒸着を 3 Å/s の蒸着レートで開始する。インターバルをおかない理由は、先に述べたように、不純物層の形成を防ぐためである。

【0101】

α -NPD のみからなる正孔輸送領域を 30nm 形成した後、 α -NPD の蒸着レートは 3 Å/s に固定したまま、電子輸送材料である BAlq の蒸着も 3 Å/s にて開始する。すなわち、 α -NPD と BAlq の比率が 1 : 1 となるような混合領域 (α -NPD + BAlq) を、共蒸着にて形成することになる。

【0102】

混合領域は 20nm 形成するが、この時、混合領域における中間の 10nm (つまり、混合領域 20nm のうち、5nm ~ 15nm の間) は、三重項発光材料である Ir(ppy)₃ を、発光材料として 7wt% の割合でドーブしておく。

【0103】

混合領域が 20nm に達した後、 α -NPD および Ir(ppy)₃ の方は蒸着を終了し、BAlq のみ引き続き蒸着し続けることで、電子輸送領域を形成する。厚さは 20nm とする。BAlq の蒸着を終了すると同時に、インターバルをおかずに、電子注入材料である Alq₃ の蒸着を開始して 30nm 程度蒸着する。インターバルをおかない理由は、先に述べたように、不純物層の形成を防ぐためである。

【0104】

最後に、陰極としてAl:Li合金を150nm程度蒸着することにより、Ir(ppy)₃に由来する緑色発光の三重項発光素子を得る。

【0105】

[実施例5]

本実施例では、本発明で開示した有機発光素子を含む発光装置について説明する。図8は本発明の有機発光素子を用いたアクティブマトリクス型発光装置の断面図である。なお、能動素子としてここでは薄膜トランジスタ（以下、「TFT」と記す）を用いているが、MOSトランジスタを用いてもよい。

【0106】

また、TFTとしてトップゲート型TFT（具体的にはプレーナ型TFT）を例示するが、ボトムゲート型TFT（典型的には逆スタガ型TFT）を用いることもできる。

【0107】

図8において、801は基板であり、ここでは可視光を透過する基板を用いる。具体的には、ガラス基板、石英基板、結晶化ガラス基板もしくはプラスチック基板（プラスチックフィルムを含む）を用いればよい。なお、基板801とは、表面に設けた絶縁膜も含めるものとする。

【0108】

基板801の上には画素部811および駆動回路812が設けられている。まず、画素部811について説明する。

【0109】

画素部811は画像表示を行う領域である。基板上には複数の画素が存在し、各画素には有機発光素子に流れる電流を制御するためのTFT（以下、「電流制御TFT」と記す）802、画素電極（陽極）803、有機化合物膜804および陰極805が設けられている。なお、図8では電流制御TFTしか図示していないが、電流制御TFTのゲートに加わる電圧を制御するためのTFT（以下、「スイッチングTFT」と記す）を設けている。

【0110】

電流制御TFT802は、ここではpチャネル型TFTを用いることが好ましい。nチャ

ネル型TFTとすることも可能であるが、図8のように有機発光素子の陽極に電流制御TFTを接続する場合は、pチャネル型TFTの方が消費電力を押さえることができる。ただし、スイッチングTFTはnチャネル型TFTでもpチャネル型TFTでもよい。

【0111】

また、電流制御TFT802のドレインには画素電極803が電氣的に接続されている。本実施例では、画素電極803の材料として仕事関数が4.5～5.5eVの導電性材料を用いるため、画素電極803は有機発光素子の陽極として機能する。画素電極803として代表的には、酸化インジウム、酸化錫、酸化亜鉛もしくはこれらの化合物（ITOなど）を用いればよい。画素電極803の上には有機化合物膜804が設けられている。

【0112】

さらに、有機化合物膜804の上には陰極805が設けられている。陰極805の材料としては、仕事関数が2.5～3.5eVの導電性材料を用いることが望ましい。陰極805として代表的には、アルカリ金属元素もしくはアルカリ度類金属元素を含む導電膜、アルミニウムを含む導電膜、あるいはその導電膜にアルミニウムや銀などを積層したもの、を用いればよい。

【0113】

また、画素電極803、有機化合物膜804、および陰極805からなる層は、保護膜806で覆われている。保護膜806は、有機発光素子を酸素および水から保護するために設けられている。保護膜806の材料としては、窒化珪素、窒化酸化珪素、酸化アルミニウム、酸化タンタル、もしくは炭素（具体的にはダイヤモンドライクカーボン）を用いる。

【0114】

次に、駆動回路812について説明する。駆動回路812は画素部811に伝送される信号（ゲート信号およびデータ信号）のタイミングを制御する領域であり、シフトレジスタ、バッファ、ラッチ、アナログスイッチ（トランスファゲート）もしくはレベルシフタが設けられている。図8では、これらの回路の基本単位としてnチャネル型TFT807およびpチャネル型TFT808からなるCMOS回路を示している。

【0115】

なお、シフトレジスタ、バッファ、ラッチ、アナログスイッチ（トランスファゲート）もしくはレベルシフタの回路構成は、公知のものでよい。また図8では、同一の基板上に画素部811および駆動回路812を設けているが、駆動回路812を設けずにICやLSIを電氣的に接続することもできる。

【0116】

また、図8では電流制御TFT802に画素電極（陽極）803が電氣的に接続されているが、陰極が電流制御TFTに接続された構造をとることもできる。その場合、画素電極を陰極805と同様の材料で形成し、陰極を画素電極（陽極）803と同様の材料で形成すればよい。その場合、電流制御TFTはnチャネル型TFTとすることが好ましい。

【0117】

ところで、図8に示した発光装置は、画素電極803を形成した後に配線809を形成する工程で作製されたものを示してあるが、この場合、画素電極803が表面荒れを起こす可能性がある。有機発光素子は電流駆動型の素子であるため、画素電極803の表面荒れにより、特性が悪くなることも考えられる。

【0118】

そこで、図9に示すように、配線909を形成した後に画素電極903を形成する発光装置も考えられる。この場合、図8の構造に比べて、画素電極903からの電流の注入性が向上すると考えられる。

【0119】

また、図8および図9においては、正テーパー型の土手状構造810または910によって、画素部811または911に設置されている各画素を分離している。この土手状構造を、例えば逆テーパー型のような構造にすることにより、土手状構造が画素電極に接しない構造をとることもできる。その一例を図10に示す。

【0120】

図10では、配線を利用して分離部を兼ねた、配線および分離部1010を設けた。図10で示されるような配線および分離部1010の形状（ひさしのある構造）は、配線を構成する金属と、前記金属よりもエッチレートの低い材料（例えば金属

窒化物)とを積層し、エッチングすることにより形成することができる。この形状により、画素電極1003や配線と、陰極1005とが、ショートすることを防ぐことができる。なお、図10においては、通常のアクティブマトリクス型の発光装置と異なり、画素上の陰極1005をストライプ状(パッシブマトリクスの陰極と同様)にする構造になる。

【0121】

ここで、図9に示したアクティブマトリクス型発光装置の外観を図11に示す。なお、図11(a)には上面図を示し、図11(b)には図11(a)をP-P'で切断した時の断面図を示す。また、図9の符号を引用する。

【0122】

図11(a)において、1101は画素部、1102はゲート信号側駆動回路、1103はデータ信号側駆動回路である。また、ゲート信号側駆動回路1102およびデータ信号側駆動回路1103に伝送される信号は、入力配線1104を介してTAB(Tape Automated Bonding)テープ1105から入力される。なお、図示しないが、TABテープ1105の代わりに、TABテープにIC(集積回路)を設けたTCP(Tape Carrier Package)を接続してもよい。

【0123】

このとき、1106は図9に示した有機発光素子の上方に設けられるカバー材であり、樹脂からなるシール材1107により接着されている。カバー材1106は酸素および水を透過しない材質であれば、いかなるものを用いてもよい。本実施例では、カバー材1106は図11(b)に示すように、プラスチック材1106aと、前記プラスチック材1106aの表面および裏面に設けられた炭素膜(具体的にはダイヤモンドライクカーボン膜)1106b、1106cからなる。

【0124】

さらに、図11(b)に示すように、シール材1107は樹脂からなる封止材1108で覆われ、有機発光素子を完全に密閉空間1109に封入するようになっている。密閉空間1109は不活性ガス(代表的には窒素ガスや希ガス)、樹脂または不活性液体(例えばパーフルオロアルカンに代表される液状のフッ素化炭素)を充填しておけばよい。さらに、吸湿剤や脱酸素剤を設けることも有効である。

【0125】

また、本実施例に示した発光装置の表示面（画像を観測する面）に偏光板をもうけてもよい。この偏光板は、外部から入射した光の反射を押さえ、観測者が表示面に映り込むことを防ぐ効果がある。一般的には、円偏光板が用いられている。ただし、有機化合物膜から発した光が偏光板により反射されて内部に戻ること防ぐため、屈折率を調節して内部反射の少ない構造とすることが好ましい。

【0126】

なお、本実施例の発光装置に含まれる有機発光素子には、本発明で開示した有機発光素子のいずれを用いてもよい。

【0127】

[実施例6]

本実施例では、本発明で開示した有機発光素子を含む発光装置の例として、パッシブマトリクス型発光装置を例示する。図12(a)にはその上面図を示し、図12(b)には図12(a)をP-P'で切断した時の断面図を示す。

【0128】

図12(a)において、1201は基板であり、ここではプラスチック材を用いる。プラスチック材としては、ポリイミド、ポリアミド、アクリル樹脂、エポキシ樹脂、PES（ポリエチレンサルファイド）、PC（ポリカーボネート）、PET（ポリエチレンテレフタレート）もしくはPEN（ポリエチレンナフタレート）を板状、もしくはフィルム上にしたものが使用できる。

【0129】

1202は酸化導電膜からなる走査線（陽極）であり、本実施例では酸化亜鉛に酸化ガリウムを添加した酸化物導電膜を用いる。また、1203は金属膜からなるデータ線（陰極）であり、本実施例ではビスマス膜を用いる。また、1204はアクリル樹脂からなるバンクであり、データ線1203を分断するための隔壁として機能する。走査線1202とデータ線1203は両方とも、ストライプ状に複数形成されており、互いに直交するように設けられている。なお、図12(a)では図示していないが、走査線1202とデータ線1203の間には有機化合物膜が挟まれており、交差部1205が画素となる。

【0130】

そして、走査線1202およびデータ線1203はTABテープ1207を介して外部の駆動回路に接続される。なお、1208は走査線1202が集合してなる配線群を表しており、1209はデータ線1203に接続された接続配線1206の集合からなる配線群を表す。また、図示していないが、TABテープ1207の代わりに、TABテープにICを設けたTCPを接続してもよい。

【0131】

また、図12(b)において、1210はシール材、1211はシール材1210によりプラスチック材1201に貼り合わされたカバー材である。シール材1210としては光硬化樹脂を用いていけばよく、脱ガスが少なく、吸湿性の低い材料が望ましい。カバー材としては基板1201と同一の材料が好ましく、ガラス（石英ガラスを含む）もしくはプラスチックを用いることができる。ここではプラスチック材を用いる。

【0132】

次に、画素領域の構造の拡大図を図12(c)に示す。1213は有機化合物膜である。なお、図12(c)に示すように、バンク1204は下層の幅が上層の幅よりも狭い形状になっており、データ線1203を物理的に分断できる。また、シール材1210で囲まれた画素部1214は、樹脂からなる封止材1215により外気から遮断され、有機化合物膜の劣化を防ぐ構造となっている。

【0133】

以上のような構成からなる本発明の発光装置は、画素部1214が走査線1202、データ線1203、バンク1204および有機化合物膜1213で形成されるため、非常に簡単なプロセスで作製することができる。

【0134】

また、本実施例に示した発光装置の表示面（画像を観測する面）に偏光板をもうけてもよい。この偏光板は、外部から入射した光の反射を押さえ、観測者が表示面に映り込むことを防ぐ効果がある。一般的には、円偏光板が用いられている。ただし、有機化合物膜から発した光が偏光板により反射されて内部に戻ること防ぐため、屈折率を調節して内部反射の少ない構造とすることが好ましい。

【0135】

なお、本実施例の発光装置に含まれる有機発光素子には、本発明で開示した有機発光素子のいずれを用いてもよい。

【0136】

[実施例7]

本実施例では、実施例6で示した発光装置にプリント配線板を設けてモジュール化した例を示す。

【0137】

図13(a)に示すモジュールは、基板1301（ここでは、画素部1302、配線1303a、1303bを含む）にTABテープ1304が取り付けられ、前記TABテープ1304を介してプリント配線板1305が取り付けられている。

【0138】

ここで、プリント配線板1305の機能ブロック図を図13(b)に示す。プリント配線板1305の内部には少なくともI/Oポート（入力もしくは出力部）1306、1309、データ信号側駆動回路1307およびゲート信号側回路1308として機能するICが設けられている。

【0139】

このように、基板面に画素部が形成された基板にTABテープが取り付けられ、そのTABテープを介して駆動回路としての機能を有するプリント配線版が取り付けられた構成のモジュールを、本明細書では特に駆動回路外付け型モジュールと呼ぶことにする。

【0140】

なお、本実施例の発光装置に含まれる有機発光素子には、本発明で開示した有機発光素子のいずれを用いてもよい。

【0141】

[実施例8]

本実施例では、実施例5もしくは実施例6に示した発光装置にプリント配線板を設けてモジュール化した例を示す。

【0142】

図14(a)に示すモジュールは、基板1401（ここでは、画素部1402、データ信

号側駆動回路1403、ゲート信号側駆動回路1404、配線1403a、1404aを含む)にTABテープ1405が取り付けられ、そのTABテープ1405を介してプリント配線板1406が取り付けられている。プリント配線板1406の機能ブロック図を図14(b)に示す。

【0143】

図14(b)に示すように、プリント配線板1406の内部には少なくともI/Oポート1407、1410、コントロール部1408として機能するICが設けられている。なお、ここではメモリ部1409を設けてあるが、必ずしも必要ではない。またコントロール部1408は、駆動回路の制御、映像データの補正などをコントロールするための機能を有した部位である。

【0144】

このように、有機発光素子の形成された基板にコントローラーとしての機能を有するプリント配線板が取り付けられた構成のモジュールを、本明細書では特にコントローラー外付け型モジュールと呼ぶことにする。

【0145】

なお、本実施例の発光装置に含まれる有機発光素子には、本発明で開示した有機発光素子のいずれを用いてもよい。

【0146】

[実施例9]

本実施例では、実施例4で示したような三重項発光素子を、デジタル時間階調表示により駆動する発光装置の例を示す。本実施例の発光装置は、三重項励起状態からの発光を利用することによって高い発光効率を達成できると同時に、デジタル時間階調表示により均一な像を得ることができ、非常に有用である。

【0147】

有機発光素子を用いた画素の、回路構成を図15(a)に示す。Trはトランジスタ、Csはストレージキャパシタを表す。この回路においては、ゲート線が選択されると、電流がソース線からTr1に流れ、その信号に対応する電圧がCsに蓄積される。そして、Tr2のゲートおよびソース間の電圧(V_{gs})により制御される電流が、Tr2および有機発光素子に流れることになる。

【0148】

Tr1が選択されたあとは、Tr1はオフ状態となり、Csの電圧 (V_{gs}) が保持される。したがって、 V_{gs} に依存するだけの電流を流し続けることができる。

【0149】

このような回路を、デジタル時間階調表示により駆動するチャートを図15(b)に示す。すなわち、1フレームを複数のサブフレームに分割するわけだが、図15(b)では、1フレームを6つのサブフレームに分割する6ビット階調とした。この場合、それぞれのサブフレーム発光期間の割合は、32:16:8:4:2:1となる。

【0150】

本実施例におけるTFT基板の駆動回路の概要を図15(c)に示す。ゲートドライバおよびソースドライバは同じ基板上に設けられている。本実施例では、画素回路およびドライバは、デジタル駆動するように設計されているため、TFT特性のばらつきの影響を受けることなく、均一な像を得ることができる。

【0151】

[実施例10]

上記実施例で述べた本発明の発光装置は、低消費電力で寿命が長いという利点を有する。したがって、前記発光装置が表示部等として含まれる電気器具は、従来よりも低い消費電力で動作可能であり、なおかつ長保ちする電気器具となる。特に電源としてバッテリーを使用する携帯機器のような電気器具に関しては、低消費電力化が便利さに直結する（電池切れが起こりにくい）ため、極めて有用である。

【0152】

また、前記発光装置は、自発光型であることから液晶表示装置のようなバックライトは必要なく、有機化合物膜の厚みも1 μm に満たないため、薄型軽量化が可能である。したがって、前記発光装置が表示部等として含まれる電気器具は、従来よりも薄型軽量の電気器具となる。このことも、特に携帯機器のような電気器具に関して、便利さ（持ち運びの際の軽さやコンパクトさ）に直結するため、極めて有用である。さらに、電気器具全般においても、薄型である（かさばらな

い)ことは運送面(大量輸送が可能)、設置面(部屋などのスペース確保)からみても有用であることは疑いない。

【0153】

なお、前記発光装置は自発光型であるために、液晶表示装置に比べて明るい場所での視認性に優れ、しかも視野角が広いという特徴を持つ。したがって、前記発光装置を表示部として有する電気器具は、表示の見やすさの点でも大きなメリットがある。

【0154】

すなわち、本発明の発光装置を用いた電気器具は、薄型軽量・高視認性といった従来の有機発光素子の長所に加え、低消費電力・長寿命という特長も保有しており、極めて有用である。

【0155】

本実施例では、本発明の発光装置を表示部として含む電気器具を例示する。その具体例を図16および図17に示す。なお、本実施例の電気器具に含まれる有機発光素子には、本発明で開示した素子のいずれを用いてもよい。また、本実施例の電気器具に含まれる発光装置の形態は、図8～図15のいずれの形態を用いてもよい。

【0156】

図16(a)は有機発光素子を用いたディスプレイであり、筐体1601a、支持台1602a、表示部1603aを含む。本発明の発光装置を表示部1603aとして用いたディスプレイを作製することにより、薄く軽量で、長保ちするディスプレイを実現できる。よって、輸送が簡便になり、設置の際の省スペースが可能となる上に、寿命も長い。

【0157】

図16(b)はビデオカメラであり、本体1601b、表示部1602b、音声入力部1603b、操作スイッチ1604b、バッテリー1605b、受像部1606bを含む。本発明の発光装置を表示部1602bとして用いたビデオカメラを作製することにより、消費電力が少なく、軽量のビデオカメラを実現できる。よって、電池の消費量が少なくなり、持ち運びも簡便になる。

【 0 1 5 8 】

図 1 6 (c) はデジタルカメラであり、本体 1601c、表示部 1602c、接眼部 1603c、操作スイッチ 1604c を含む。本発明の発光装置を表示部 1602c として用いたデジタルカメラを作製することにより、消費電力が少なく、軽量のデジタルカメラを実現できる。よって、電池の消費量が少なくなり、持ち運びも簡便になる。

【 0 1 5 9 】

図 1 6 (d) は記録媒体を備えた画像再生装置であり、本体 1601d、記録媒体 (CD、LD、または DVD など) 1602d、操作スイッチ 1603d、表示部 (A) 1604d、表示部 (B) 1605d を含む。表示部 (A) 1604d は主として画像情報を表示し、表示部 (B) 1605d は主として文字情報を表示する。本発明の発光装置をこれら表示部 (A) 1604d や表示部 (B) 1605d として用いた前記画像再生装置を作製することにより、消費電力が少なく軽量な上に、長保ちする前記画像再生装置を実現できる。なお、この記録媒体を備えた画像再生装置には、CD 再生装置、ゲーム機器なども含む。

【 0 1 6 0 】

図 1 6 (e) は携帯型 (モバイル) コンピュータであり、本体 1601e、表示部 1602e、受像部 1603e、操作スイッチ 1604e、メモリスロット 1605e を含む。本発明の発光装置を表示部 1602e として用いた携帯型コンピュータを作製することにより、消費電力が少なく、薄型軽量の携帯型コンピュータを実現できる。よって、電池の消費量が少なくなり、持ち運びも簡便になる。なお、この携帯型コンピュータはフラッシュメモリや不揮発性メモリを集積化した記録媒体に情報を記録したり、それを再生したりすることができる。

【 0 1 6 1 】

図 1 6 (f) はパーソナルコンピュータであり、本体 1601f、筐体 1602f、表示部 1603f、キーボード 1604f を含む。本発明の発光装置を表示部 1603f として用いたパーソナルコンピュータを作製することにより、消費電力が少なく、薄型軽量のパーソナルコンピュータを実現できる。特に、ノートパソコンのように持ち歩く用途が必要な場合、電池の消費量や軽さの点で大きなメリットとなる。

【 0 1 6 2 】

なお、上記電気器具はインターネットなどの電子通信回線や電波などの無線通

信を通じて配信される情報を表示することが多くなってきており、特に動画情報を表示する機会が増えている。有機発光素子の応答速度は非常に速く、そのような動画表示に好適である。

【 0 1 6 3 】

次に、図 1 7 (a) は携帯電話であり、本体 1701a、音声出力部 1702a、音声入力部 1703a、表示部 1704a、操作スイッチ 1705a、アンテナ 1706a を含む。本発明の発光装置を表示部 1704a として用いた携帯電話を作製することにより、消費電力が少なく、薄型軽量の携帯電話を実現できる。よって、電池の消費量が少なくなり、持ち運びも楽になる上にコンパクトな本体にできる。

【 0 1 6 4 】

図 1 7 (b) は音響機器（具体的には車載用オーディオ）であり、本体 1701b、表示部 1702b、操作スイッチ 1703b、1704b を含む。本発明の発光装置を表示部 1702b として用いた音響機器を作製することにより、消費電力が少なく、軽量の音響機器を実現できる。また、本実施例では車載用オーディオを例として示すが、家庭用オーディオに用いても良い。

【 0 1 6 5 】

なお、図 1 6 ～ 図 1 7 で示したような電気器具において、さらに光センサを内蔵させ、使用環境の明るさを検知する手段を設けることで、使用環境の明るさに応じて発光輝度を変調させるような機能を持たせることは有効である。使用者は、使用環境の明るさに比べてコントラスト比で 100 ～ 150 の明るさを確保できれば、問題なく画像もしくは文字情報を認識できる。すなわち、使用環境が明るい場合は画像の輝度を上げて見やすくし、使用環境が暗い場合は画像の輝度を抑えて消費電力を抑えるといったことが可能となる。

【 0 1 6 6 】

また、本発明の発光装置を光源として用いた様々な電気器具も、低消費電力での動作や薄型軽量化が可能であるため、非常に有用と言える。代表的には、液晶表示装置のバックライトもしくはフロントライトといった光源、または照明機器の光源として本発明の発光装置を含む電気器具は、低消費電力の実現や薄型軽量化が可能である。

【 0 1 6 7 】

したがって、本実施例に示した図 1 6 ～図 1 7 の電気器具の表示部を、全て液晶ディスプレイにする場合においても、その液晶ディスプレイのバックライトもしくはフロントライトとして本発明の発光装置を用いた電気器具を作製することにより、消費電力が少なく、薄くて軽量の電気器具が達成できる。

【 0 1 6 8 】

【発明の効果】

本発明を実施することで、消費電力が少ない上に、寿命も優れた発光装置を得ることができる。さらに、そのような発光装置を光源もしくは表示部に用いることで、明るく消費電力が少ない上に、長保ちする電気器具を得ることができる。

【図面の簡単な説明】

【図 1】 有機化合物膜の状態を表す図。

【図 2】 蒸着装置を示す図。

【図 3】 有機発光素子の構成を示す図。

【図 4】 有機化合物膜の状態を表す図。

【図 5】 有機発光素子の構成を示す図。

【図 6】 蒸着装置を示す図。

【図 7】 有機発光素子の構成を示す図。

【図 8】 発光装置の断面構造を示す図。

【図 9】 発光装置の断面構造を示す図。

【図 1 0】 発光装置の断面構造を示す図。

【図 1 1】 発光装置の上面構造および断面構造を示す図。

【図 1 2】 発光装置の上面構造および断面構造を示す図。

【図 1 3】 発光装置の構成を示す図。

【図 1 4】 発光装置の構成を示す図。

【図 1 5】 発光装置の構成を示す図。

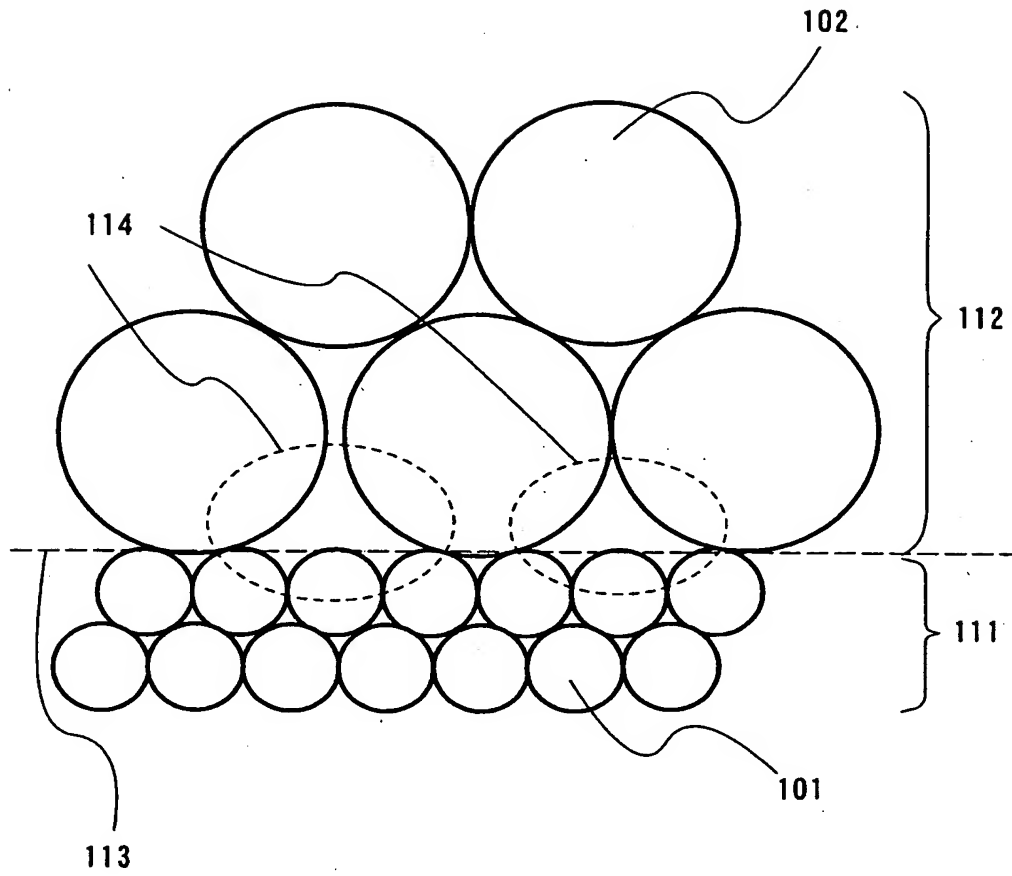
【図 1 6】 電気器具の具体例を示す図。

【図 1 7】 電気器具の具体例を示す図。

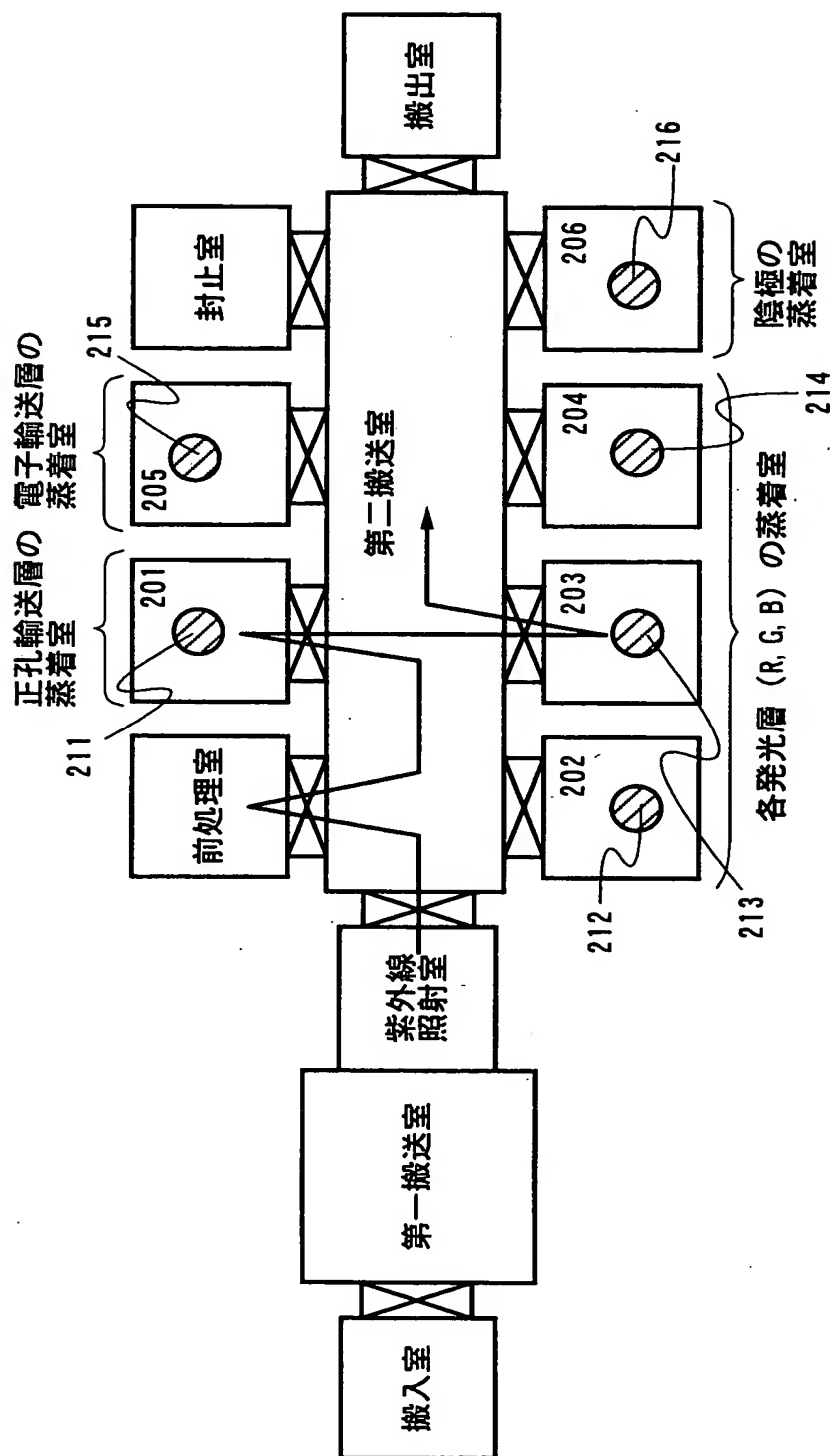
特2001-020817

【書類名】 図面

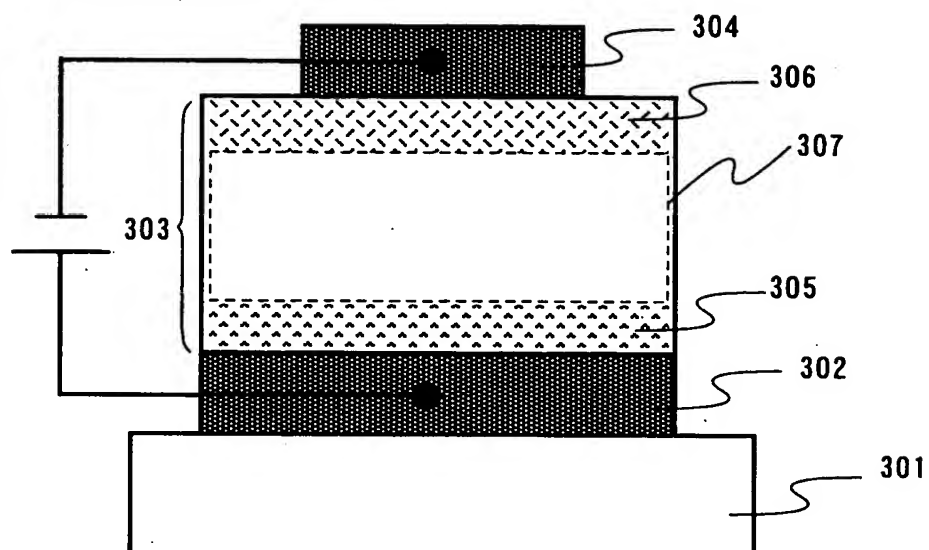
【図 1】



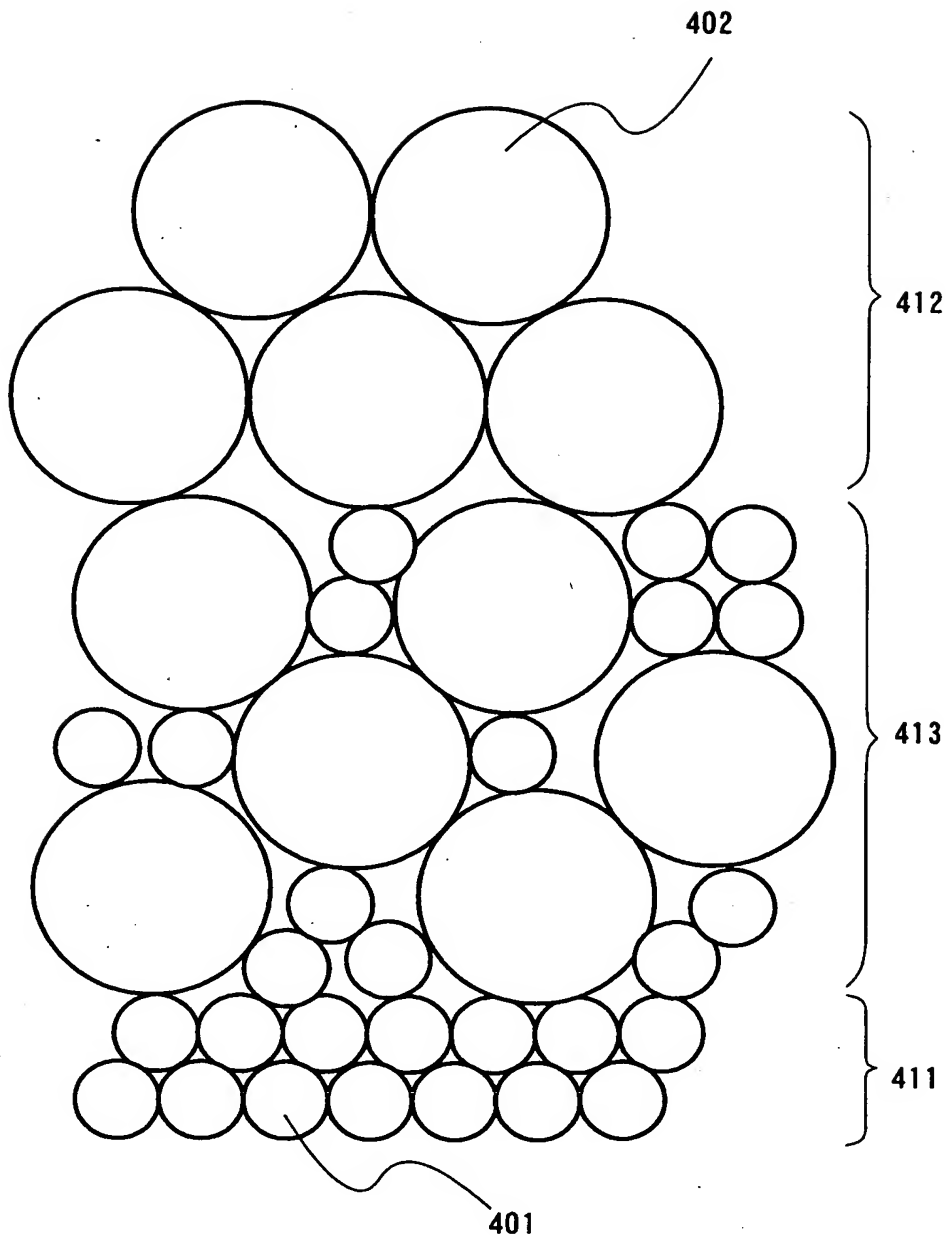
【図 2】



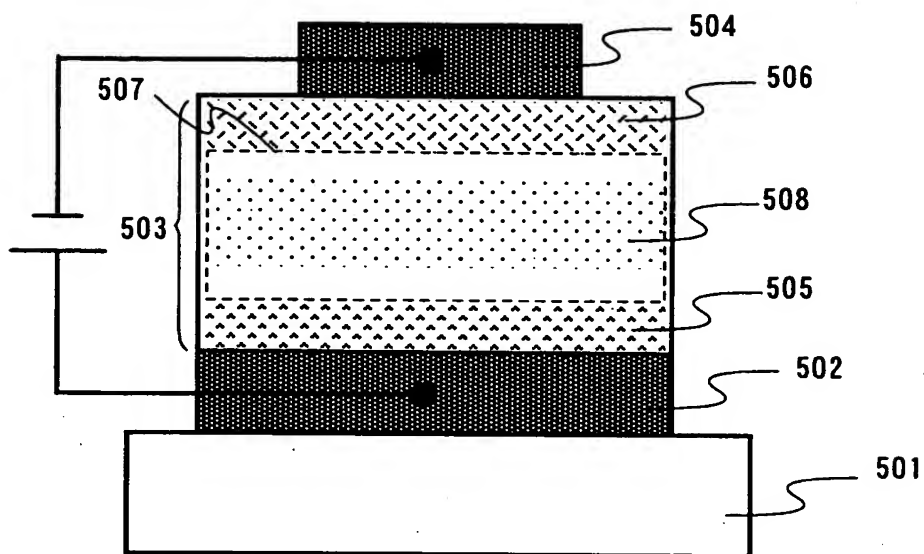
【図 3】



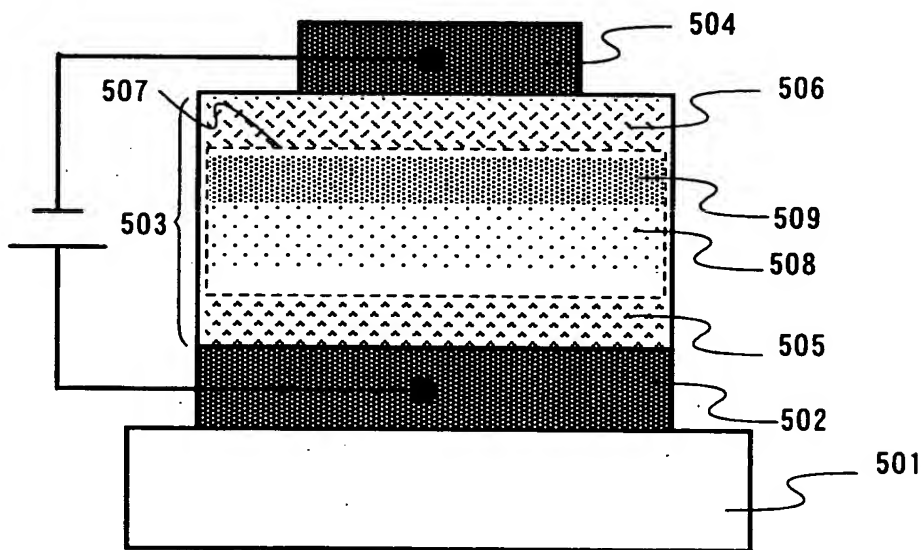
【図 4】



【図 5】

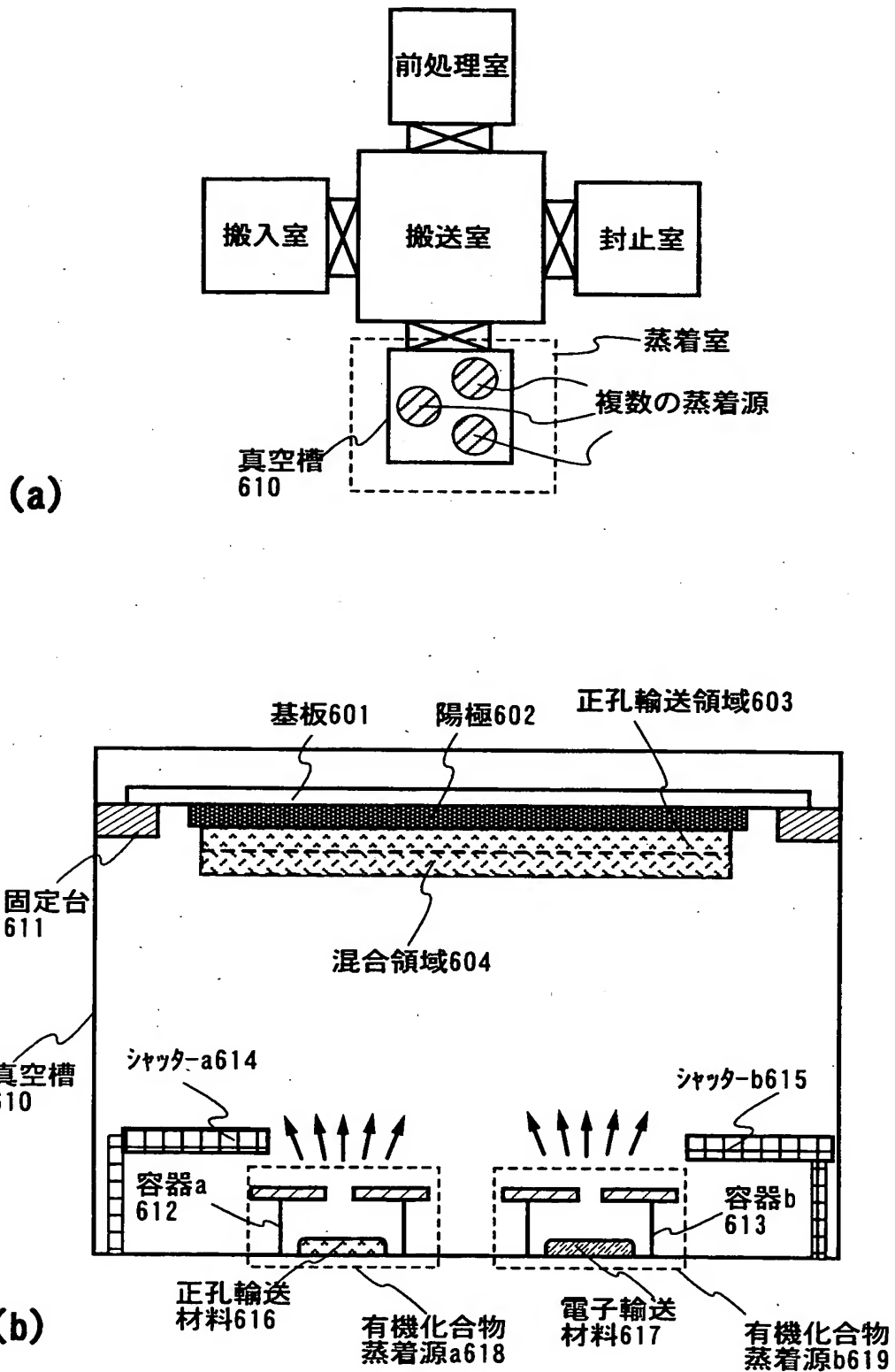


(a)

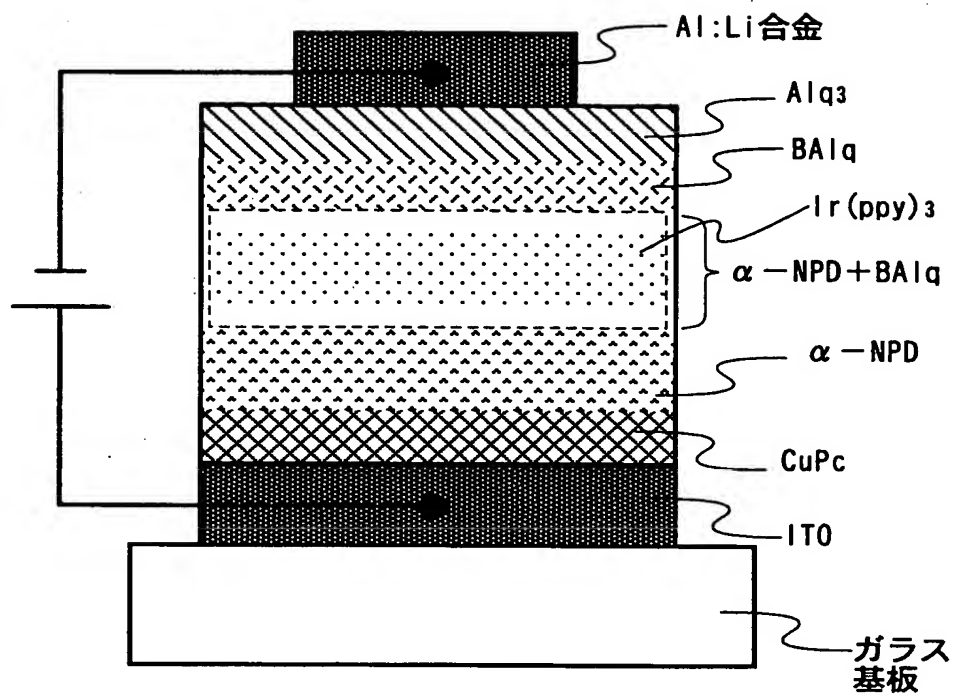


(b)

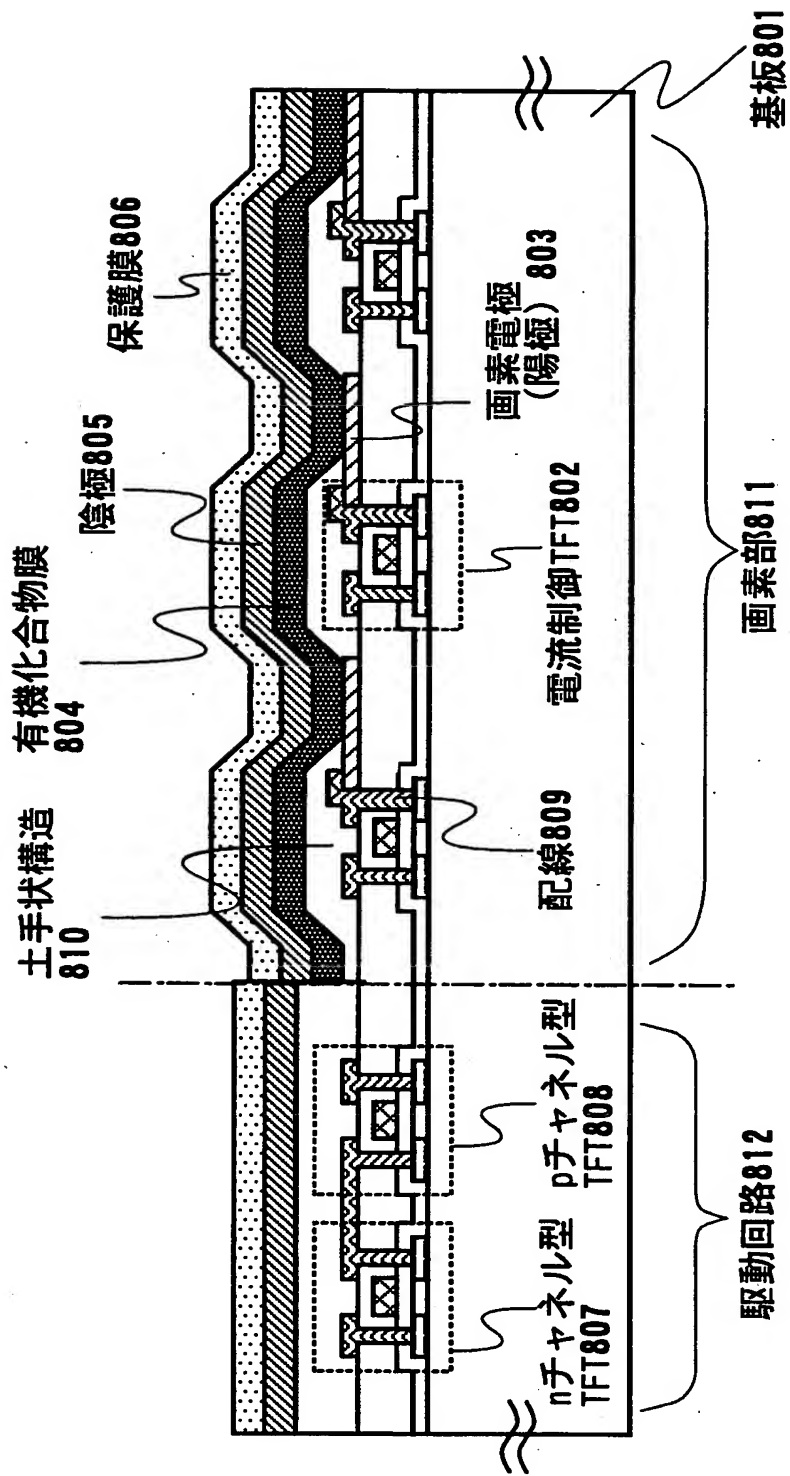
【図 6】



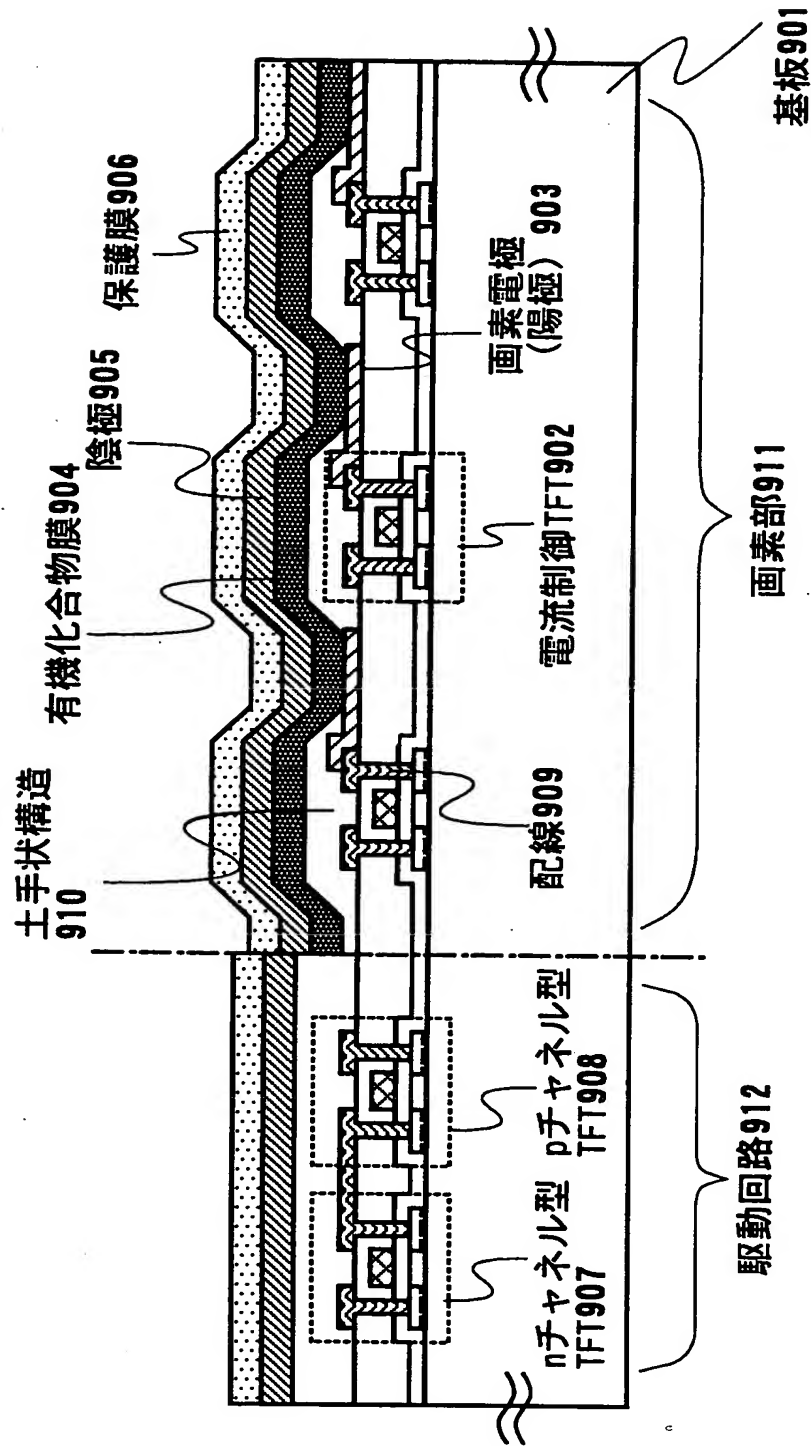
【図7】



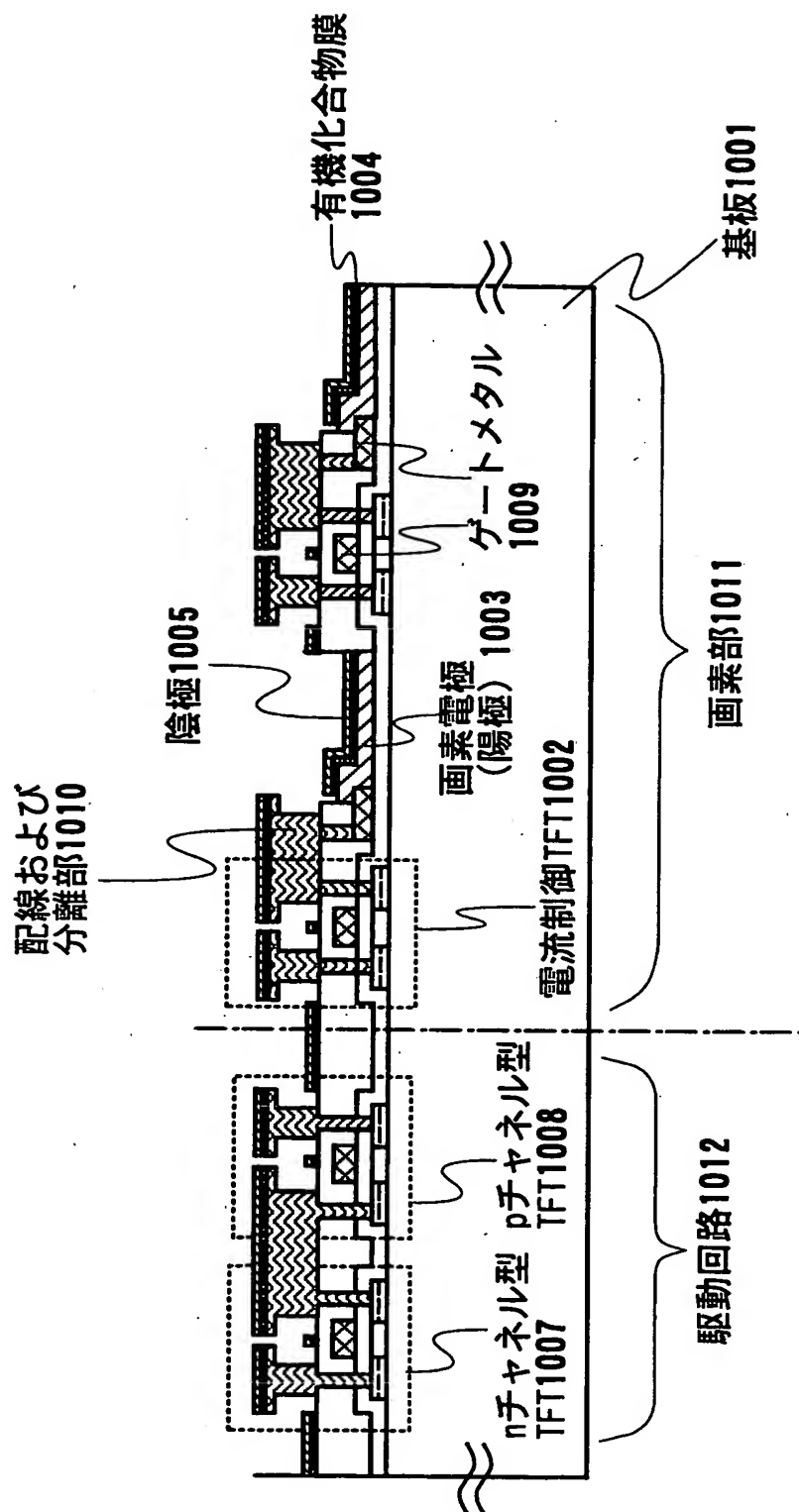
【図 8】



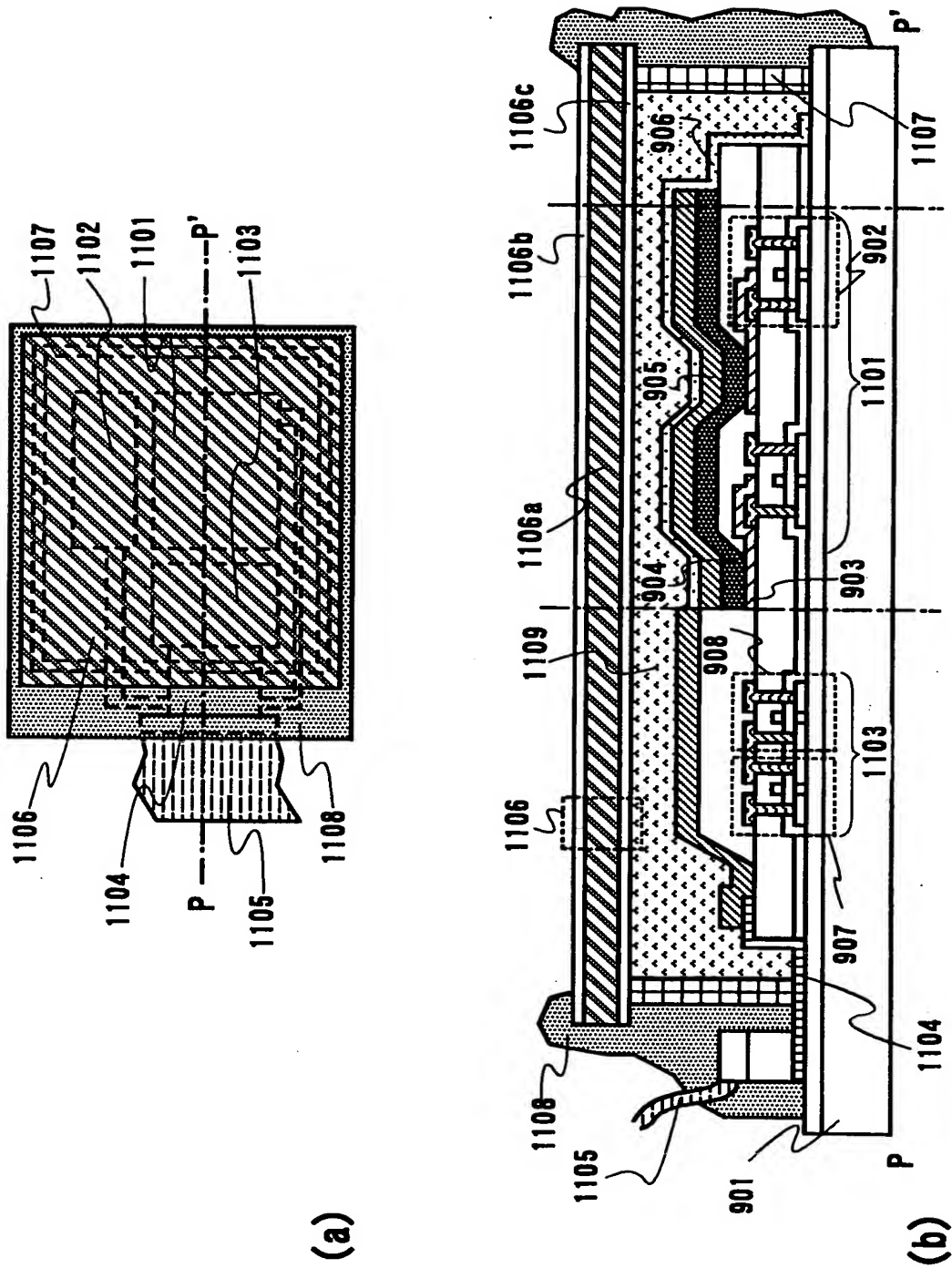
【図9】



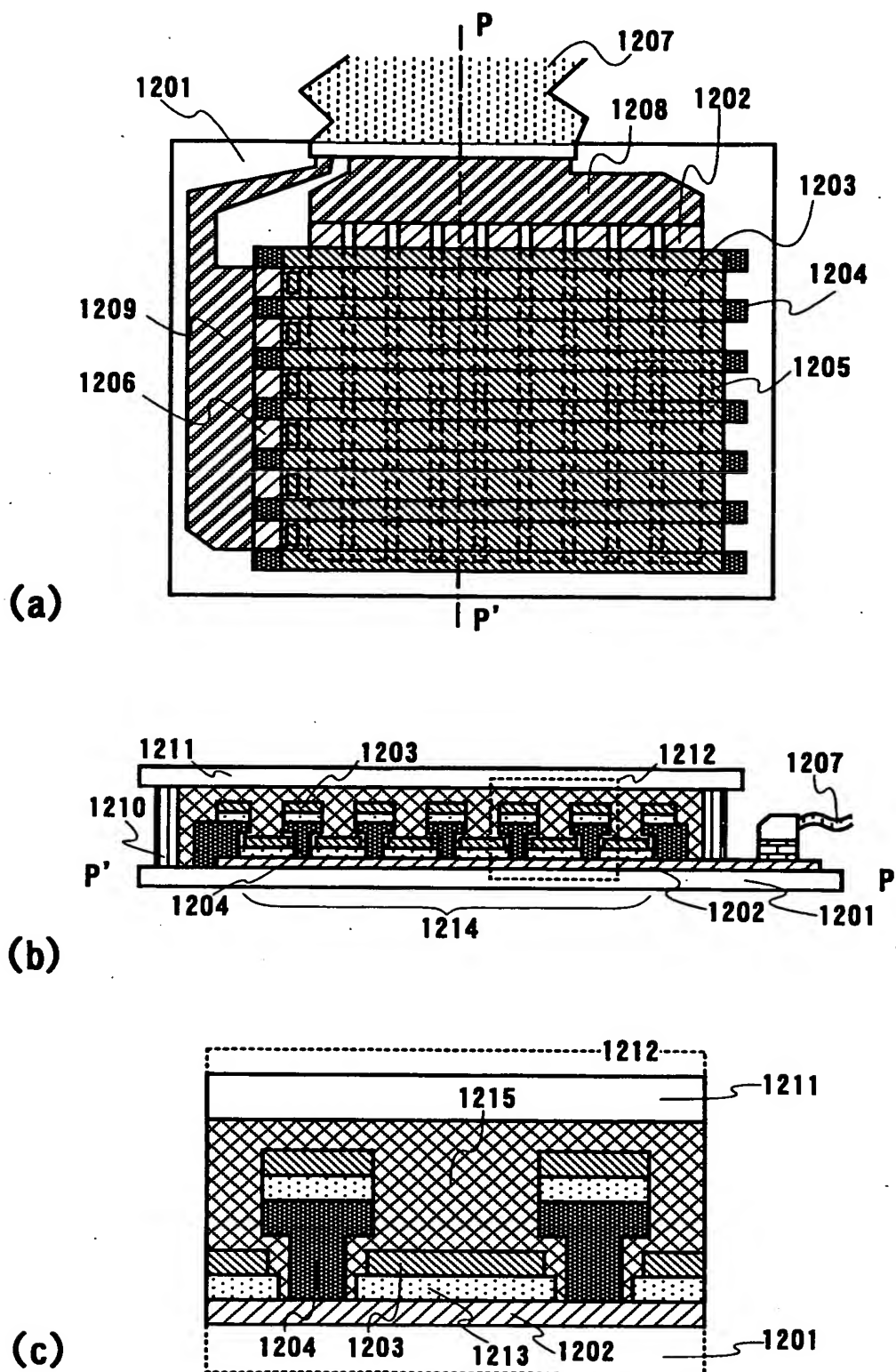
【図10】



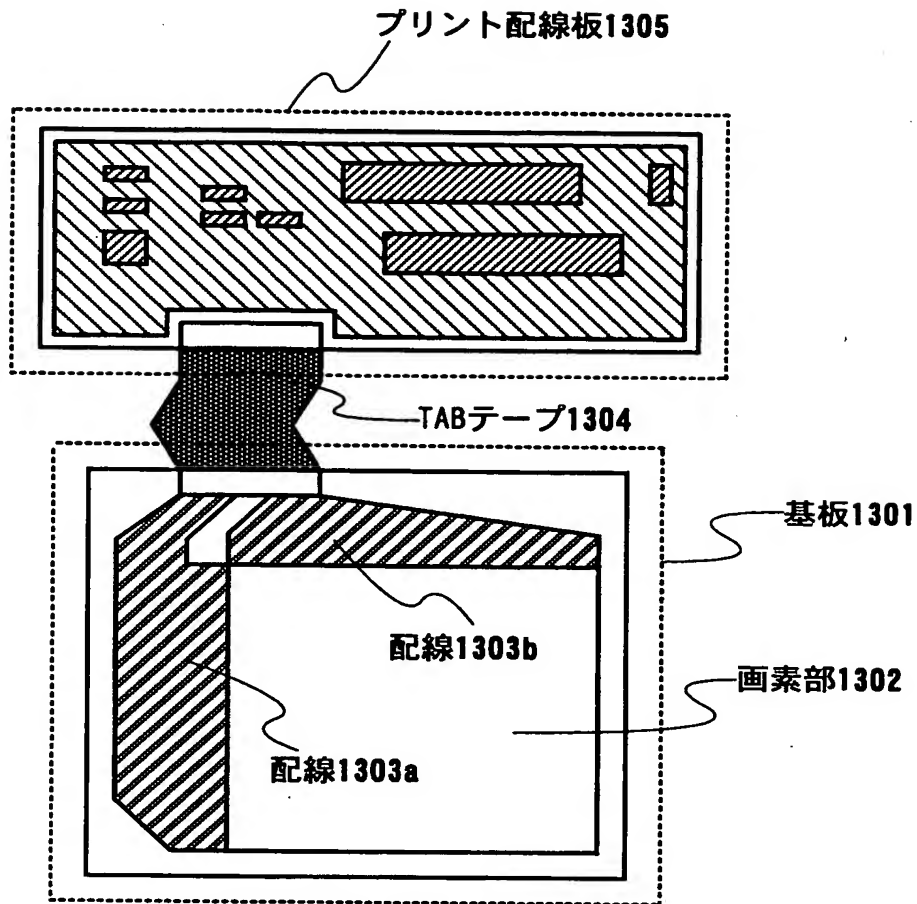
【図 11】



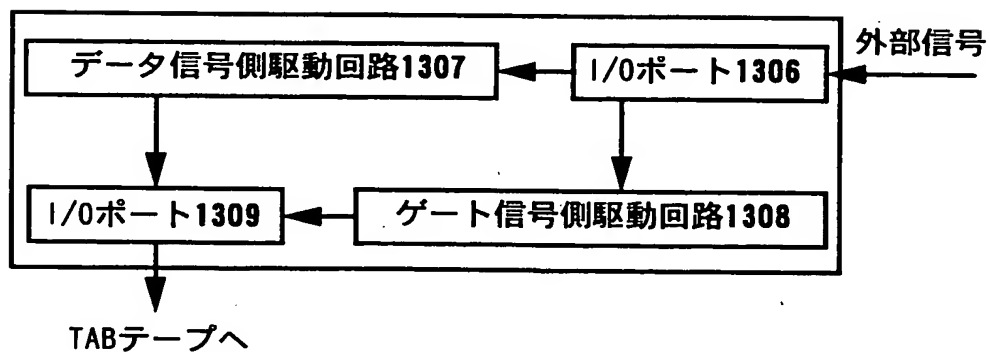
【図 12】



【図13】

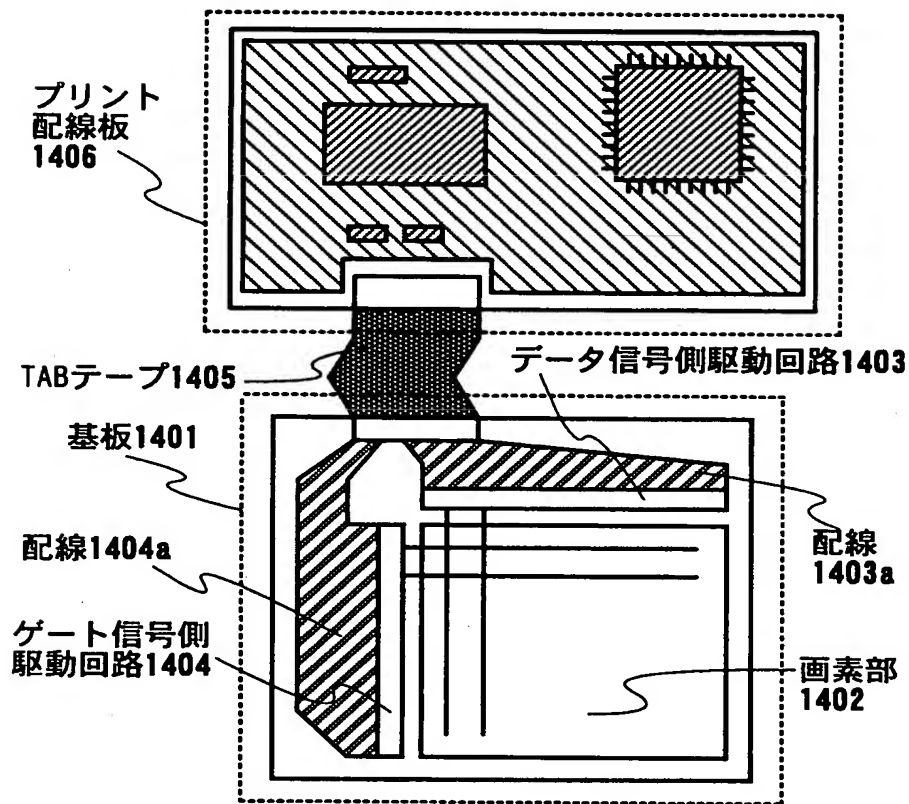


(a)

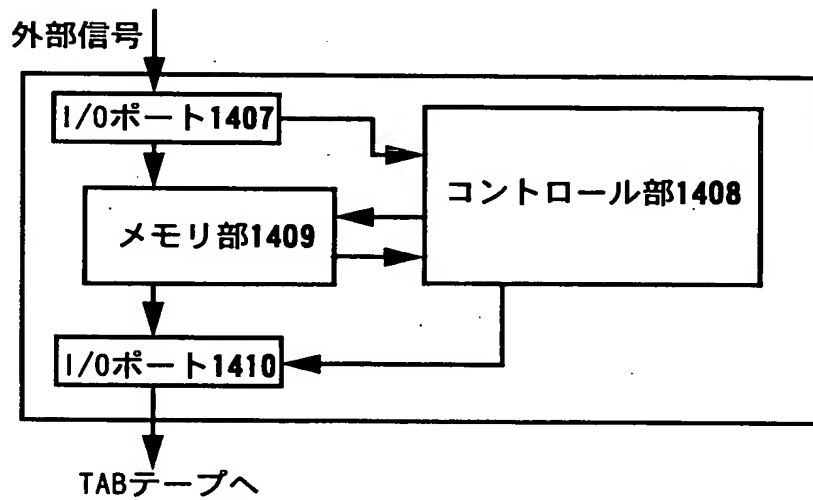


(b)

【図 14】

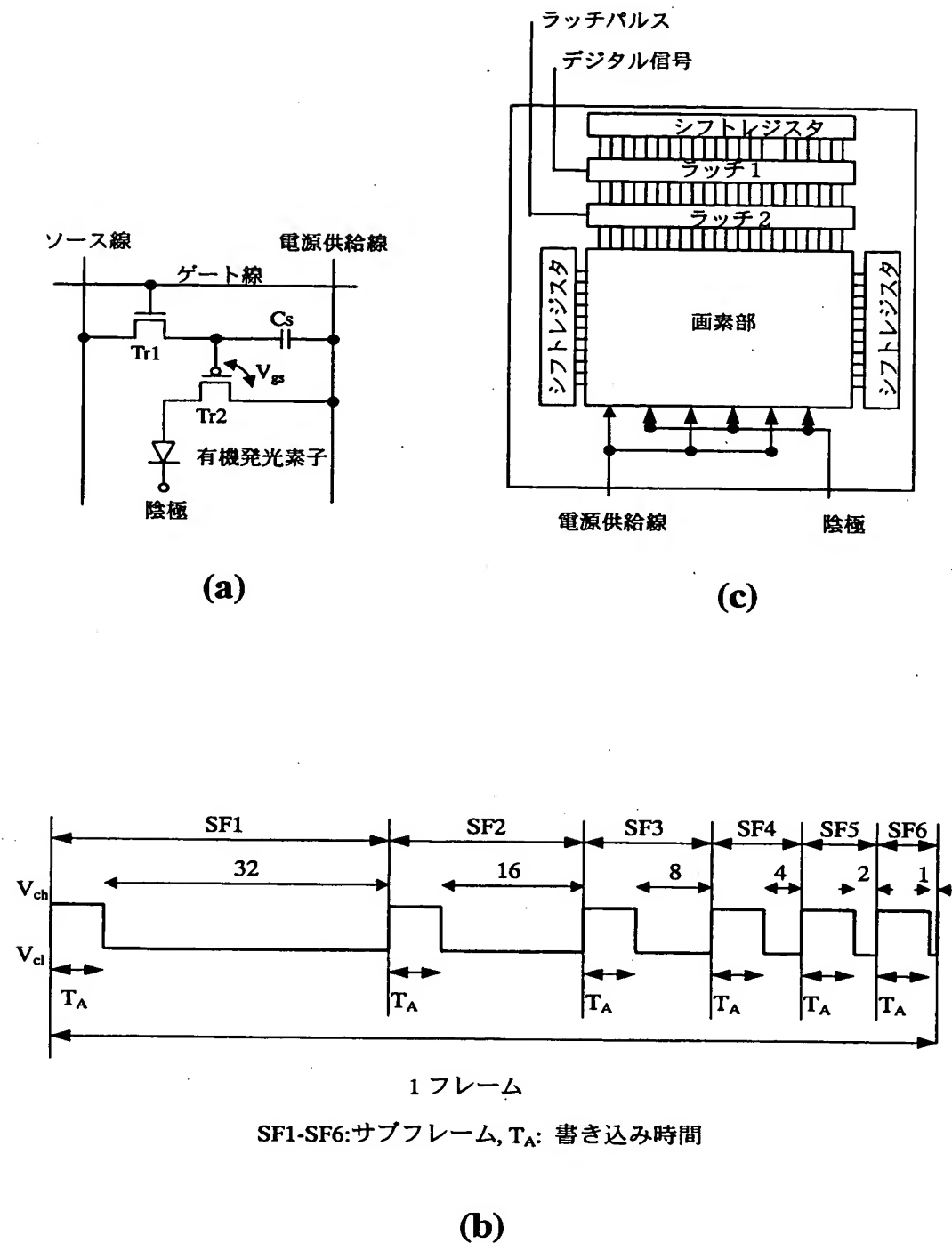


(a)

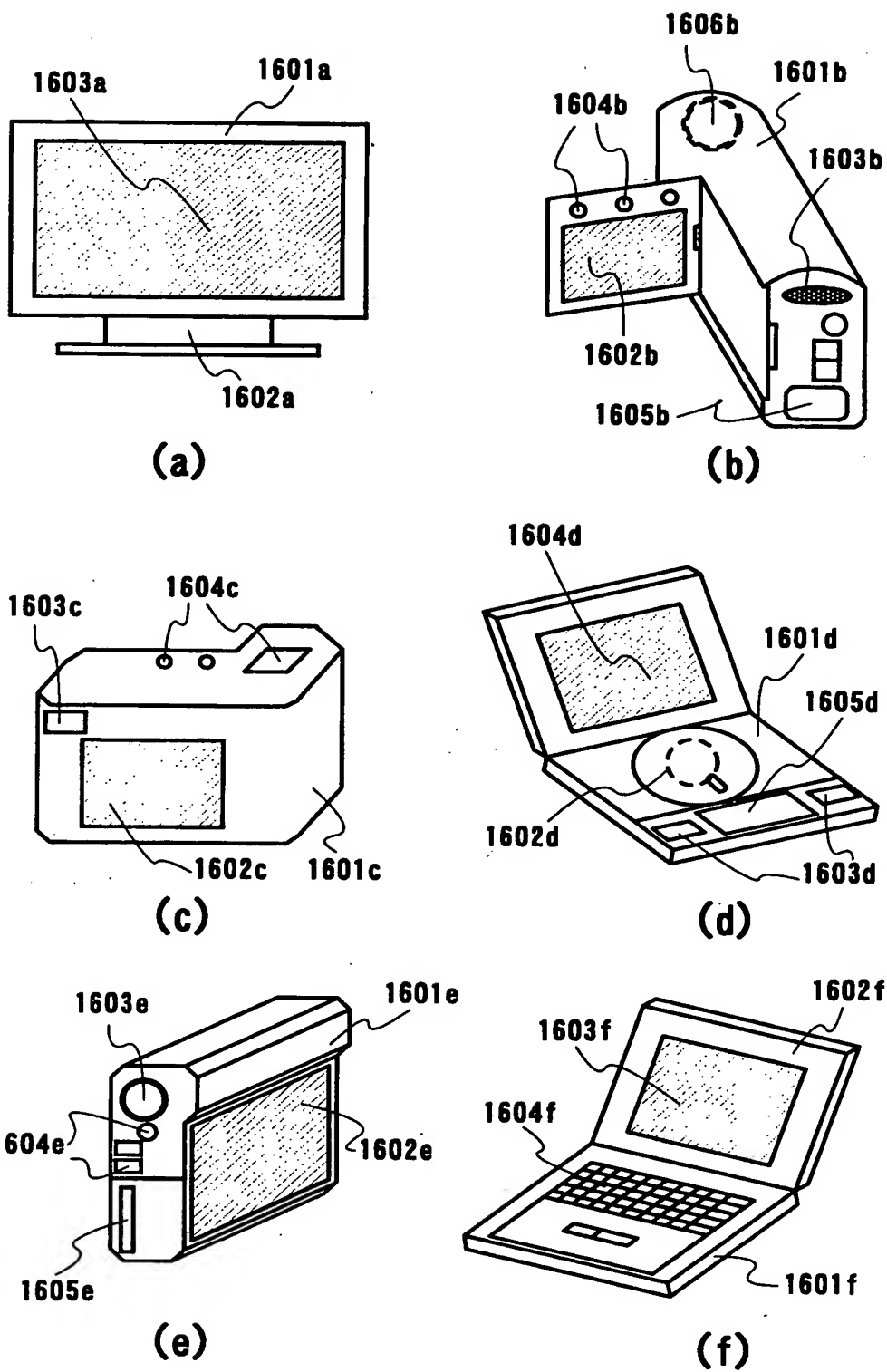


(b)

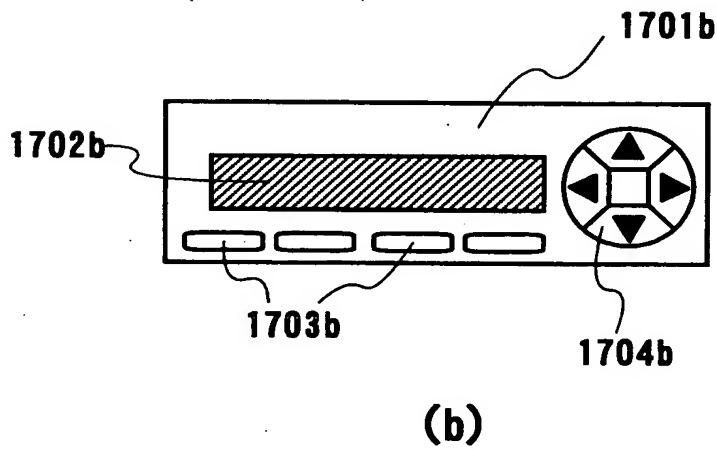
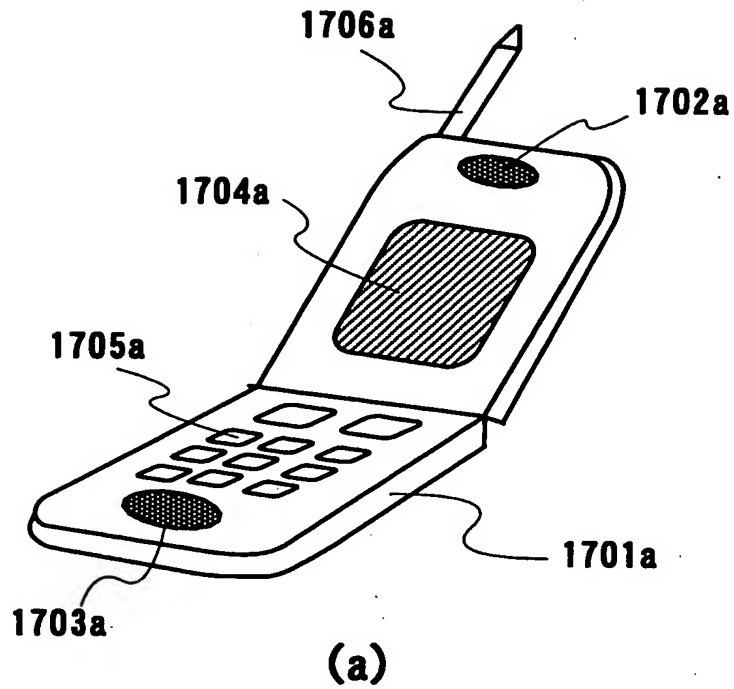
【図 15】



【図 16】



【図 17】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 低消費電力で、寿命の長い発光装置および電気器具を提供する。

【解決手段】 有機化合物膜303内に、正孔輸送材料からなる正孔輸送領域305と、電子輸送材料からなる電子輸送領域306と、正孔輸送材料および電子輸送材料の両方が混合された混合領域（発光領域）307と、を設けることにより、従来の積層構造に存在する各層間の界面を排除し、なおかつ正孔輸送、電子輸送、発光の各機能は発現させる。この手法により、消費電力が低く寿命の長い有機発光素子を提供し、前記有機発光素子を用いて発光装置および電気器具を作製する。

【選択図】 図3

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000153878]

1. 変更年月日	1990年 8月17日
[変更理由]	新規登録
住 所	神奈川県厚木市長谷398番地
氏 名	株式会社半導体エネルギー研究所